

Neutronoptikai célú fém vékonyrétegek vizsgálata

Doktori értekezés

Készítette: Veres Tamás

ELTE TTK Fizika Doktori Iskola

Doktori Iskola vezetője: Prof. Tél Tamás

Anyagtudomány és szilárdtestfizika doktori program

Program vezetője: Prof. Groma István

Témavezető: Cser László DSc, Bottyán László CSc

MTA Wigner Fizikai Kutatóközpont

Szilárdtestfizikai és Optikai Intézet

2018

Neutronoptikai célú fém vékonyrétegek vizsgálata

1	Bevezetés	3
2	A spekuláris neutron- és röntgenreflektometria alapjai	7
2.1	A sugárzás kölcsönhatása az anyaggal, törés, abszorpció	7
2.2	Tisztán spekuláris visszaverődés	10
2.3	Fresnel-reflexió	10
2.4	Visszaverődés rétegrendszeréről	13
2.5	Spekuláris reflektivitás elmosódott, illetve érdes határfelületek esetén	15
2.6	A spekuláris mérések gyakorlati kérdései	17
3	Offspekuláris neutron- és röntgenszórás	18
3.1	A szóródást leíró Schrödinger-egyenlet	18
3.2	A torzított hullámú Born-közelítés (DWBA)	19
3.3	Érdes rétegrendszerek diffúz szórásának számítása	20
3.4	A rétegfelületek domborzati korrelációja	21
3.5	Rezonáns diffúz szórás, korrelált inhomogenitások	23
3.6	Yoneda-csúcsok	24
3.7	A reciproktér bejárása offspekuláris mérésekkel	26
3.8	A véges kollimáció hatása az offspekuláris mérésekre	29
3.9	Koherenciahossz	31
4	Neutron szupertükrök	32
4.1	Kinematikus elmélet, a Mezei-szupertükrök	33
4.2	Periodikus szerkezetek reflektivitása dinamikus megközelítésben	35
4.3	A szakaszosan periodikus, Carron-Ignatovich szerkezet	36
4.4	A Hayter-Mook algoritmus	37
5	Mintakészítés és mérési eszközök	38
5.1	Egyenáramú magnetronporlasztó	38
5.2	A REF neutron reflektométer	40
5.3	A GINA neutron reflektométer	40
5.4	Röntgenreflektométerek	40
6	REF reflektométer és felújítása	41
6.1	A reflektométer a felújítás előtt	41
6.2	A fókuszáló monokromátor	42
6.3	A vezérlés felújítása	45
7	A Ni(Mo)-Ti periodikus rétegszerkezetek jellemzése röntgendiffrakcióval és spekuláris reflektometriával	46
7.1	A vizsgált rétegszerkezetek	46
7.2	Röntgendiffrakció	48
7.3	Neutronreflektometria	48
7.4	Röntgenreflektometria	50
7.5	A kapott eredmények és értékelésük	50
8	Rezonáns Diffúz Szórás periodikus Ni(Mo)-Ti rétegrendszerben	53
8.1	Kísérleti eredmények	55

8.2	A másolódási korrelációs hossz becslése az RDS kinematikus elmélete alapján	58
9	Rezonáns diffúz szórás Ni-Ti neutron szupertükrökön	60
9.1	Kísérleti eredmények és DWBA illesztések	61
9.2	Szupertükrök rezonáns diffúz szórásának értelmezése	68
9.2.1	Az RDS különböző módjai és rendjei periodikus rétegrendszerekben	68
9.2.2	Az RDS különböző módjai és rendjei szupertükrökben	72
9.3	A spekuláris és offspekuláris szórás intenzitása	78
10	A neutrontükrök reflektivitásának érzékenysége a rétegrendszer hibáira	80
10.1	Hayter-Mook és Carron-Ignatovich algoritmussal tervezett tükrök kísérleti összehasonlítása	81
10.2	Különböző szupertükrök reflektivitásának hibatűrése	81
10.2.1	A vizsgált szupertükrök szerkezetek	82
10.2.2	A reflektivitás jellemzése	82
10.2.3	A határfelületek elmosódottságának hatása a szupertükrök spekuláris reflektivitására	84
10.2.4	Az abszorpció hatása	85
10.2.5	Véletlenszerű eltérések a rétegvastagságokban	87
10.3	Felületi olajréteg hatása a neutrontükrök reflektivitására	89
10.3.1	Tesztminták készítése	89
10.3.2	Neutronreflektometriai mérések és értelmezésük	91
10.3.3	A szennyezés neutronvezetőre kifejtett hatásának becslése	93
11	Összefoglalás, kitekintés	96
12	Summary	97
13	Tézisek	99
14	Köszönetnyilvánítás	101
15	Irodalom	101

1 Bevezetés

Termikus és lassú neutronok segítségével számos alap- és alkalmazott kutatási kérdés tanulmányozható, és a szórási folyamat különbözősége miatt a röntgenszórási eljárások eredményeihez képest lényegesen más, vagy kiegészítő információt kaphatunk. A neutronszórás különösen alkalmas könnyű elemekből álló, pl. szerves minták vizsgálatára. Izotóphelyettesítés alkalmazásával egy kémiai azonos szerkezet eltérő kontrasztot mutathat, ami a neutronszórási spektroszkópiák szinte egyedülálló lehetősége. A neutronok nagy behatolási mélysége révén a minta roncsolása nélkül nagyobb tárgyak is tanulmányozhatók (pl. szerkezeti anyagok belső feszültségének mérése, régészeti leletek és műtárgyak összetételének és belső szerkezetének vizsgálata). A neutronnak mágneses momentuma van, ezért polarizált neutronok szórásával mágneses szerkezeteket vizsgálhatunk. A neutronnak a röntgenfotonokhoz képest csekély, nagyságrendileg termikus energiája lehetővé teszi a kondenzált anyagok gerjesztései (fononok, magnonok) diszperziós görbéinek meghatározását.

A neutronforrásokban felszabaduló neutronok aránylag csekély száma miatt a mintamegvilágítás növelése és a jel/háttér viszony javítása kulcsfontosságú. A mintáig a neutron különféle – egyenes, görbe, fókuszáló – neutronvezetők falain történő visszaverődések során jut el.

A neutron szupertükrök olyan vékonyréteg szerkezetek, amelyek reflektivitása nagy a homogén anyagok kritikus szöge és annak 2-7-szerese (az adott szupertükörre jellemző határszög) közötti szögtartományban is. A szerkezetben kétféle, eltérő szóráshosszsúságú anyagból álló réteg váltakozik. A nem-polarizáló neutron szupertükrök leggyakrabban Ni és Ti rétegekből állnak, mivel ezek neutronoptikai kontrasztja nagy. Az általam vizsgált szerkezetek a nyaláb depolarizáció és felületi érdesség csökkentése érdekében a Ni rétegek Mo adalékot is tartalmaztak. A szükséges rétegek száma több száz és több ezer közötti, a szerkezet kívánt határszögének megfelelően. Az egyes rétegek vastagsága úgy választandó, hogy a Ni kritikus szöge és a határszög között a rétegrendszer határfelületein visszaverődő neutronok interferenciája konstruktív legyen, és így kellően nagy reflektivitást eredményezzen. A rétegek

vastagsága vagy folytonosan változik a szerkezetben, vagy esetleg különböző rétegpárvastagságú periódikus részeket egymás tetejére párologtatva áll elő a szupertükör szerkezet.

A határfelületek érdekessége, élettensége a szerkezet reflektivitásának csökkenését eredményezi. A rétegrendszerek határfelületének minősége természetesen nem csak a neutronoptikában lényeges, hanem szinte minden gyakorlati alkalmazásban (röntgenoptika, mágneses vékonyrétegek). A multirétegek határfelületeinek élességét, illetve érdekességét, az érdekesség autokorrelációs tulajdonságait, valamint másolódását ezért már sokan tanulmányozták mind szórási, mind mikroszkópos módszerekkel.

Spekuláris (röntgen-, illetve neutron-)reflektometriával a minta síkjában kiátlagolt szóráshosszsűrűség mélységi eloszlása határozható meg. Offspekuláris szórás akkor lép fel, ha a minta síkjával párhuzamos eltolási szimmetria sérül, például felületi érdekesség, mágneses domének, vagy zárványok miatt. Az offspekuláris szórási képből következtethetünk a határfelületi érdekesség korrelációs tulajdonságaira. Az offspekuláris szórás mérésére reflektométereket, illetve különböző kisszögű szórási berendezéseket alkalmaznak. Utóbbi módszerre elterjedt a GISAS rövidítés (angolul „Grazing Incidence Small Angle Scattering”, azaz kisszögű szórás súroló beesés mellett).

A vékonyrétegek határfelületeinek és a keletkező rétegek szerkezetének és kialakulásának (szerkezeti zóna modellek¹, oszlopos növekedés) vizsgálatára számos rendszerben (pl. Ni-Ti szupertükör², Si-Ge³, Au-Cu⁴ rétegek) végeztek transzmissziós elektronmikroszkópiai vizsgálatokat.

A növekvő rétegszerkezet határfelületeinek leírására különféle analitikus és numerikus modellek ismeretesek, amelyek azok fraktáljellegét és korrelációs tulajdonságait magyarázzák^{5,6}. A leggyakrabban alkalmazott modell szerint a határfelületek önmagukkal és egymással való korrelációját a mintasíkkal párhuzamos irányban egy síkbeli korrelációs hossz és a határfelület fraktáldimenziójára jellemző Hurst-paraméter írja le, a különböző határfelületek korrelációja pedig exponenciálisan lecseng a mintára merőleges irányban, aminek karakterisztikus hossza a másolódási korrelációs hossz. A határfelületi érdekesség különböző hullámhosszú összetevői nem feltétlenül azonos mértékben másolódnak a rétegnövesztés során. Amennyiben a másolódási korrelációs hossz nagy, a

Bragg-törvényhez hasonló feltétel mellett erős offspekuláris szórás tapasztalunk, amit Rezonáns Diffúz Szórásnak (RDS) nevezünk.

Munkám célja az volt, hogy a neutronoptikai célokra használt Ni(Mo)-Ti rétegrendszerek határfelületi életlenségét, érdességét, ennek korrelációs paramétereit reflektometriai módszerekkel meghatározzam. A mikroszkópiával szemben e módszerek használatához nem szükséges speciális mintaelőkészítés, továbbá ezek a módszerek a minták nagy felületét jellemzik. Motivációim között szerepelt a vizsgálatok eredményeinek jövőbeli ipari hasznosítása is, a neutronoptikai eszközöket és szupertükröket gyártó hazai cég, a Mirrotron Kft. és a Wigner Fizikai Kutatóközpont együttműködésében. Egy ilyen együttműködés különösen aktuális most, az Európai Spallációs Forrás (ESS) építésének éveiben.

Szupertükrök, illetve hasonló rétegleválasztási módszerrel készült periodikus szerkezetek, sávszűrők offspekuláris szórását vizsgálták Fe-Si polarizáló szerkezeteken⁷, valamint ionnyaláb-porlasztott Ni-Ti és NiC-Ti rendszereken. Ugyanakkor a gyakorlatban fontosak a Ni(Mo)-Ti szupertükrök, amelyek kizárólag magnetron-porlasztással készülnek. Ilyen típusú multirétegszerkezetek offspekuláris szórásvizsgálatára a jelen munkával összemérhető részletességű munkát nem ismerünk. Az idézett munkákban az offspekuláris szórásgörbe illesztésével meghatározták a korrelációs paramétereket, de a szórási képeken megfigyelhető karakterisztikus mintázatokra fizikailag szemléletes magyarázatot nem adtak. Periódikus szerkezetek esetén a beesési és visszaverődési szög függvényében ábrázolt offspekuláris szórási intenzitástérkép jellegzetességeit a szakirodalomban már alaposan leírták és ezek magyarázata jól ismert (erős szórás bizonyos vonalak mentén az RDS illetve dinamikus effektusok miatt). Dolgozatomban rendszerezem és értelmezem a lassan változó vastagságú, korreláltan érdes (szupertükrök) rétegszerkezetekre a szórási képen megfigyelhető szabályos mintázatu nagyobb intenzitású platókat. Magyarázatomat fordított rétegsorrendű szupertükrök offspekuláris szórása kísérleti vizsgálatának értelmezésével is alátámasztom.

A szupertükrökön fellépő offspekuláris szórás nem csak információt nyújt a szerkezetükről, hanem neutronoptikai felhasználhatóságukat befolyásolja. Például a

kisszögű szórási alkalmazásokban gyakori fókuszáló elrendezésben nemkívánatos háttérter képeznek a detektoron.

Dolgozatom bevezetést követő 2. fejezetében a spekuláris, 3. fejezetében az offspekuláris reflektometria elméletét foglalom össze. A 4. fejezetben a szupertükrök rétegszerkezetének tervezésére szolgáló módszereket ismertetem. Az 5. fejezetben a mintakészítés és a munkám során használt berendezések leírása szerepel. Egymást kiegészítő röntgen- és neutronreflektometriai eredmények munkámban egyaránt szerepelnek. A röntgenfotonok és neutronok behatolási mélysége lényegesen eltérő. A μm -vastag szupertükröszerkezetek átvilágítására csak a neutron alkalmas. A röntgenforrások nagy fényessége viszont nagyobb felbontású és nagy dinamikus tartományú mérések elvégzését tette lehetővé a vékonyabb minták esetében.

Dolgozatom ezt követő fejezetei tartalmazzák a saját eredményeimet. Méréseim elvégzése érdekében korszerűsítenem kellett a Budapesti Neutronközpont REF neutron reflektométerét, ezt a 6. fejezetben ismertetem. A 7. fejezetben a határfelület elmosódottságát, érdekességét és a Ni(Mo)-Ti periodikus rétegrendszer tervezett rétegvastagságaitól és szóráshosszsűrűségeitől való eltéréseket spekuláris röntgen és neutron reflektometriai vizsgálatok alapján határoztam meg. A határfelületi érdekesség másolódását és annak korrelációs tulajdonságait offspekuláris reflektometriával vizsgáltam, a viszonylag vékony periodikus szerkezetekre (8. fejezet) röntgen-, a vastag szupertükrökre (9. fejezet) neutronsugárzást használtam. A változó vastagságú rétegpárokból felépített szupertükrök esetén a szórási képet rezonáns diffúz szórásként (RDS) értelmeztem. Meghatároztam, hogy a beesési és visszaverődési szögek függvényében ábrázolt szórási térkép mely területein jelennek meg az RDS adott rendjei és módjai.

Végül foglalkoztam (10. fejezet) a szupertükrök néhány lehetséges hibájának a technológia számára fontos paraméterekre gyakorolt hatásaival is. Numerikus szimulációval vizsgáltam különböző algoritmusokkal kapott szupertükrök rétegszerkezetek hibátűrését, továbbá kísérleti úton és Monte-Carlo szimuláció segítségével a szupertükrök felület szerves anyaggal történő szennyeződését.

2 A spekuláris neutron- és röntgenreflektometria alapjai

2.1 A sugárzás kölcsönhatása az anyaggal, törés, abszorpció

A neutronszerzési vizsgálatokban hazánkban viszonylag kevés kutató járatos, ezért talán érdemes kissé bővebben tárgyalni egyes alapfogalmakat és összefüggéseket. A neutron a magerők következtében, valamint mágneses momentuma révén hat kölcsön az anyaggal⁸. A neutronszerzési kísérletek esetében a hullámhossz jóval nagyobb a szerzőcentrum, esetünkben az atommag méreténél. Ha a bejövő, egységnyi amplitúdójú neutron síkhullám egyetlen, nem mágneses atomon szerződik, akkor a szerzőt hullám gömbszimmetrikus, és az atommag hatása a szerzőt hullám f komplex amplitúdójával jellemezhető.⁹

A szerzési kísérletekben alkalmazott neutronok energiája a magerők potenciáljával összevetve igen kicsi, ezért f ebben a tartományban nem függ az energiától.¹⁰ A szerzési amplitúdó képzetes része a neutronok elnyelését írja le, az abszorpció szerzőkeresztmetszet értéke

$$\sigma_a = \frac{4\pi}{k} \text{Im } f, \quad (1)$$

ahol $k=(2mE)^{1/2}/\hbar$ a hullámszám.

Az f szerzési amplitúdó $E \rightarrow 0$ határesetben vett értékének -1-szeresét szerzési hosszának nevezzük, és b -vel jelöljük. A különféle magok szerzési hosszát rendkívül bonyolult soktestprobléma megoldása adná, ezért csak mérésével lehet meghatározni azokat, neutronoptikai vagy esetleg diffrakciós módszerekkel. A legpontosabb értékeket (kb. $\Delta b/b=10^{-4}$) a gravitációs reflektometria és a neutron interferometria nyújtja^{11,12}. Ellentétben a röntgen- és elektronszerzéssel, a neutronok szerzőshossza nem monoton a rendszám függvényében, hanem rendszertelenül változóknak mutatkozik, és adott elem izotópjaira is jelentősen eltérő lehet. Ezenkívül a magerők spinfüggése következtében a magspin és a neutronspin egymáshoz viszonyított irányától is függ.

A fentiek miatt egy elemet nem jellemezhetünk egyetlen b értékkel. A szerzési hossz (izotópokra és azok spinjeire vett) átlagát koherens szerzési hosszának nevezzük, és b_c -vel jelöljük, az ebből számított $\sigma_{coh} = 4\pi|b_c|^2$ mennyiség pedig a koherens szerzési

hatáskeresztmetszet. A magok szórási hatáskeresztmetszetének átlaga a teljes szórási hatáskeresztmetszet. A teljes és a koherens szórási hatáskeresztmetszetek különbsége az inkoherens szórási hatáskeresztmetszet, ami abból adódik, hogy a különféle izotópok és a neutron spin irányának határozatlansága miatt eltérő szórási amplitúdójú magok véletlenszerűen oszlanak el az anyagban.

A pontszerűnek tekinthető mag neutronokkal való kölcsönhatását a

$$V(\underline{r}) = -\frac{2\pi \hbar^2}{m} f \delta(\underline{r}) \quad (2)$$

Fermi-féle kvázipotenciál írja le, ahol $\delta(\underline{r})$ a Dirac-delta. Gyakorlatban a minták sok magból állnak, ezek együttes potenciálja

$$V(\underline{r}) = \sum_i \frac{2\pi \hbar^2}{m} f_i \delta(\underline{r}_i - \underline{r}), \quad (3)$$

ahol az i index az anyag egyes magjaira utal¹⁰.

Amennyiben a minta nem kristályos, vagy kristályos, de nincs Bragg-helyzetben, a homogén kondenzált anyag belsejébe behatoló neutron is síkhullámként írható le, aminek hullámvektorát a legegyszerűbben úgy kapjuk meg, hogy a helyfüggő $V(r)$ potenciált helyettesítjük annak térfogatra vett átlagával. A reflektometriai (és kisszőgű szórási) kísérletekben a mintára eső és a detektált nyaláb iránya csaknem azonos, így a q hullámszám változása is csekély, következésképpen az $1/q$ karakterisztikus hosszánál finomabb részletek kiátlagolódnak. A sok magon való sokszoros szóródásra vonatkozó egyenlet önkonzisztens megoldása a fentivel azonos végeredményre vezet¹³. A homogén anyag tehát a

$$V = \frac{2\pi \hbar^2}{m} \frac{b_c}{V_1} = \frac{2\pi \hbar^2}{m} \rho_{SL} \quad (4)$$

átlagos potenciállal jellemezhető, ahol ρ_{SL} a szóráshosszsűrűség, V_1 pedig az egy atomra eső anyagtérfogat.

A röntgenreflektometria esetében az elektromágneses sugárzás az elektromos töltésekkel lép kölcsönhatásba. A magok nagy tömege miatt az elektronok szerepe a meghatározó. A szabad elektron szórási hossza egyenlő a klasszikus elektronsugárral, azaz

$$r_e = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{m_e^2 c^2} = 2,8179 \cdot 10^{-15} \text{ m-rel.}$$

Röntgensugarak esetében a Z rendszámú elem szórási hossza közel van a szabad elektronokra kapható $Z \cdot r_e$ értékhez, de energia- és irányfüggő, komplex korrekciós tényezőt kell alkalmazni. Az energiafüggés oka az, hogy a szórási kísérletekben a röntgensugárzás energiája összemérhető az atomban található elektronok gerjesztési energiájával (pl. abszorpciós élek figyelhetők meg). A maggal ellentétben az elektronfelhő kiterjedése a hullámhosszhoz hasonló nagyságrendű, ezért a szórás irányfüggő. Tehát egyetlen atom szóráshossza:

$$f(\theta, E) = r_e (Z + f'(\theta, E) + i f''(\theta, E)), \quad (5)$$

ahol f' és f'' a fent említett komplex korrekciós tényező valós és képzetes részei, θ és E a szóródás szögét és a röntgenfotonok energiáját jelöli. Ez a neutronokra vonatkozó mennyiséggel teljesen analóg.⁴¹

A hullámszám k'' képzetes része a nyaláb közegben történő gyengülését írja le. A hullámfüggvény abszolút értéke d hosszúságú úton $\exp(-k''d)$ szerint csökken.

$$k'' = \text{Im } k = \lambda \text{Im } \rho_{SL} = \frac{1}{2} N_{atom} (\sigma_a + \sigma_{sc}) \quad (6)$$

vagyis a nyaláb gyengülését az abszorpció és a nyalábból való kiszóródás okozza. A (6) képletben N_{atom} a minta egységnyi térfogatában lévő atomok számát jelöli¹⁴.

2.2 Tisztán spekuláris visszaverődés

Ha a minta síkbeli eltolási szimmetriát mutat, vagyis a szóráshosszsűrűség csak a minta felszínére merőleges z irányban változik, akkor a \underline{k} hullámszámvektor felülettel párhuzamos összetevője megmarad, a visszaverődés tisztán spekuláris, csak a beesési szöggel egyenlő visszaverődési szögnél van reflexió. A mintáról való visszaverődést a mintasíkra merőleges irányú mozgásra vonatkozó egydimenziós Schrödinger-egyenlet írja le, ami a \underline{k} felülettel párhuzamos összetevőjétől független, csak a felületre merőleges $k_{0,z}$ komponenstől függ. Bárhogy is hajtjuk végre a mérést, állandó hullámhosszon vagy repülési idő-módszerrel, a $k_{0,z}$ függvényében adhatjuk meg a mért reflektivitást.

A ρ_{SL} szóráshosszsűrűségű homogén közegben a be- illetve kifelé haladó síkhullám

hullámvektorának a mintafelületre merőleges k_z összetevője:

$$k_z = \pm \sqrt{k_{0,z}^2 - 4\pi\rho_{SL}}. \quad (7)$$

2.3 Fresnel-reflexió

Sík határfelületű, homogén minta esetén a hullámfüggvény és deriváltjának folytonosságát felhasználva a klasszikus optikához hasonlóan a visszaverődés r és a behatolás t Fresnel-féle amplitúdóját alábbiak szerint kapjuk:

$$r_{0,1} = \frac{k_0 - k_1}{k_0 + k_1}, \quad (8)$$

$$t_{0,1} = \frac{2k_0}{k_0 + k_1}. \quad (9)$$

Itt k_0 és k_1 a hullámszámvektor felületre merőleges komponense a vákuumban illetve a mintában. Tisztán képzetes k_1 esetén, mivel k_0 mindig valós, $|r_{0,1}| = 1$, vagyis teljes visszaverődés következik be a következő kritikus k_c -nél kisebb k_0 esetén, ahol $k_c = \sqrt{4\pi \operatorname{Re} \rho_{SL}}$.

A kritikus szög a $k_c = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta_c$ összefüggés szerint a hullámhosszal egyenesen arányos:

$$\theta_c = \sqrt{\frac{\operatorname{Re} \rho_{SL}}{\pi}} \lambda, \quad (10)$$

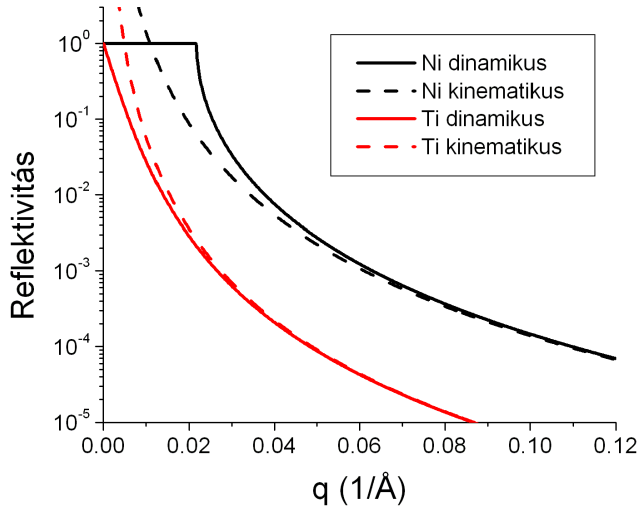
és $\theta_c > \theta_{in}$ beesési szög esetén teljes visszaverődést kapunk. A gyakorlatban elérhető neutron hullámhosszaknál ezek elég kis szögek. A tiszta nikkell szórási hosszának sűrűsége az anyagok között az egyik legnagyobb a többi anyaghoz képest, de kritikus szöge 1 \AA -ös neutronhullámhosszra csupán $0,1^\circ$. A tiszta Ni számolt neutronreflektivitását az 1. ábra mutatja $q = (4\pi/\lambda) \sin \theta_{in}$ függvényében. Látni fogjuk, hogy nagy szögek esetén több rétegből álló minták esetén is kicsi a reflektivitás, ezért a reflektometriában néhány foknál nagyobb szögeknél nem célszerű mérni. Az 1. táblázatban megadom néhány anyag neutronra és röntgenre vonatkozó szóráshosszsűrűségét, az általam használt neutron és röntgenreflektométer hullámhosszára vonatkozó kritikus szögét, és a (7) egyenlet alapján számolt behatolási mélységeket $(1/(2 \operatorname{Im} \rho_{SL} \lambda))$ merőleges beesés mellett.

Anyag	SLD (neutron) (10^{-6} \AA^{-2})	θ_c (neutron, fokban)	neutron behatolási mélység (cm)	SLD (röntgen) (10^{-6} \AA^{-2})	θ_c (röntgen, fokban)	röntgen behatolási mélység (cm)
Ni	9.4+i*0.003	0.42	0.37	64.06+i*1.54	0.4	0.002
Ti	-1.91+i*0.00125	--	0.93	35.47+i*3.04	0.3	0.0011
Si	2.07+i*0.00019	0.2	6.2	20+i*0.28	0.22	0.011
Fe	8.024+i*0.00176	0.39	0.66	59.3+i*7.75	0.38	0.00042
Üveg	3.8+i*0.00032	0.27	1.29	20.6+i*0.69	0.23	0.0047

1. táblázat: néhány anyag komplex neutron- és röntgen szóráshosszsűrűsége (SLD), és kritikus szöge, továbbá behatolási mélysége merőleges beesés mellett. A kritikus szög, az SLD képzetes része és a behatolási mélység hullámhosszfüggő, ezeket a kísérleteimben használt hullámhosszakra (neutronokra 4.3 Å és röntgenre 1.54 Å (réz K-α)) adom meg. A behatolási mélység az a táv, amely alatt a nyaláb intenzitása 1/e-ed részére csökken.

Röntgensugárzásra nézve minden elem szórási hossza pozitív, de neutronokra néhány elem (pl. H, Ti) esetében negatív. Ha a szóráshosszsűrűség negatív, nincs kritikus szög, hanem a $k \rightarrow 0$ határértékben lévő teljes visszaverődést rögtön a reflektivitás gyors csökkenése követi, amint az 1 ábrán a Ti esetére láthatjuk.

Nagy k -ra a reflektivitás amplitúdójának (8) értéke $\pi \rho_{SL} / k^2$ -hez tart, ami azonos a kinematikus közelítésben (a bejövő nyaláb síkhullámként halad a mintában is, törés és gyengülés nélkül) számolt reflektivitással. A reflektivitás ennek négyzete, ami nagy szögeknél $1/k^4$ szerint csökken. Az 1. ábrán a Ni és Ti kinematikus közelítéssel számolt reflektivitását is feltüntettem.



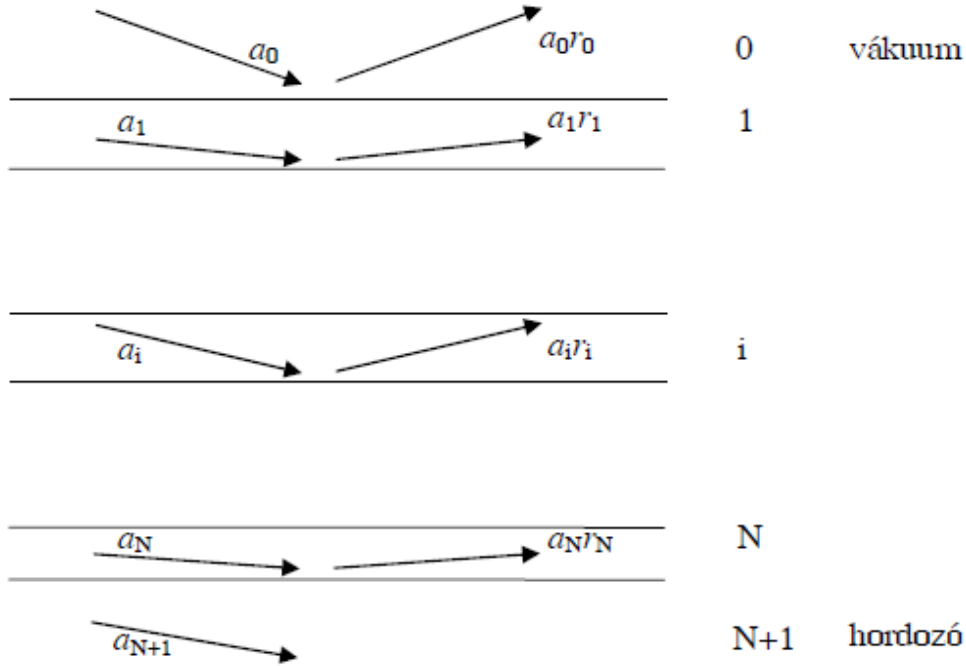
1 ábra: Homogén félvégtelen Ni (pozitív szóróshosszsűrűség) és Ti (negatív szóróshosszsűrűség) dinamikusan és kinematikusan számított neutronreflektivitása. Nagy q hullámszámváltozás esetén a kétféle számolás eredménye megegyezik, de kisebb q -knál a kinematikus közelítés érvényét veszti: 1-nél nagyobb reflektivitást ad, és $q=0$ -nál divergál.

2.4 Visszaverődés rétegrendszeréről

A homogén közeg esetéhez hasonlóan az éles határfelülettel rendelkező, rétegekből álló mintára ugyancsak a hullámfüggvény és deriváltjának folytonosságát kihasználva számolhatjuk ki a hullámfüggvényt és a reflektivitást. Ha a minta N rétegből áll, és számozásuk a minta felszínétől haladva nő, akkor az i -edik réteg belsejében a hullámfüggvény egy be- és egy kifelé tartó, $k_i = \sqrt{k_0^2 - 4\pi\rho_i}$ hullámszámú komponens (k_0 a hullámszám felületre merőleges összetevője a vákuumban) összege:

$$\psi_i(z) = a_i [\exp(ik_i z) + r_i \exp(-ik_i z)] \quad (11)$$

A következő, 2. ábrán a rétegek számozását szemléltetem. Az adott rétegekben a bejövő és kimenő síkhullámok hullámszámvektorait jelképező nyilak mellett feltüntettem a megfelelő a_i és r_i együtthatókat.



2. ábra: A rétegek számozása. Az ábrától jobbra látható a rétegek sorszáma, az egyes rétegekben pedig a bejövő hullámok a_i és a visszavert hullámok $a_i r_i$ amplitúdója.

Az N -edik rétegben, mivel a hordozóban csak befelé haladó nyaláb van, $r_N = (k_N - k_{\text{substrate}}) / (k_N + k_{\text{substrate}})$. Innét indulva, a folytonossági feltételeket kihasználva az egyes rétegekben a reflektált nyaláb r_i és a_i együttthatóit egymás után az alábbi, Parratt-féle rekurziós formulával kapjuk.¹⁵

$$r_i = \frac{r_{i,i+1} + r_{i+1} \exp(2id_{i+1}k_{i+1})}{1 + r_{i,i+1}r_{i+1} \exp(2id_{i+1}k_{i+1})} \quad (12)$$

$$a_i = \frac{1}{2k_i} \left[(k_i + k_{i+1}) \exp(-ik_{i+1}d_{i+1}) + (k_i - k_{i+1}) \exp(ik_{i+1}d_{i+1}) r_{j+1} \right] a_{i+1} \quad (13)$$

ahol $r_{i,i+1}$ az egyes réteghatárokon való reflektivitást jelöli, $r_{i,i+1} = (k_i - k_{i+1}) / (k_i + k_{i+1})$.

A minta fölötti vákuum a 0. réteg a fenti számozás szerint, itt a reflektált és beeső síkhullámok amplitúdójának aránya r_0 , tehát a teljes rendszer reflektivitása $R = |r_0|^2$.

A szupermátrix algoritmus¹⁶ szintén a hullámfüggvény és deriváltjának folytonosságán alapszik. Használata a polarizációmentes esetben is elegáns és szemléletes, de mágneses minták polarizált reflektometriai vizsgálata esetén szükséges. Hátránya a nagyon

nagyszámú, illetve a nagyon vastag rétegek esetén mutakozó numerikus instabilitás. Általános esetben a be- és kimenő, fel- és lefelé álló spinű síkhullámok amplitúdóit négy komplex számból álló vektorral írjuk le. Ez a vektor a z (mintafelszínre merőleges) koordináta függvénye. Ha adott z -nél ismert ez a vektor, akkor mátrixszorzással tetszőleges helyen meghatározható az értéke. A rétegen belüli haladást leíró terjedési mátrix a síkhullámok terjedése alapján határozható meg, a réteghatárokon való átlépés mátrixa pedig a hullámfüggvény és deriváltjának folytonossága alapján. Kihasználva, hogy a hordozóban csak befelé haladó hullám van, megkapható a 2×2 -es reflektivitásmátrix, amivel megszorozva a beeső fel- és lefelé mutató spinű hullámok amplitúdójának vektorát, megkapjuk a visszavert fel- és lefelé mutató spinű hullámok amplitúdójának vektorát. Nagy előnye a módszernek, hogy a rétegek mágnesezettsége tetszőleges irányú lehet, változhat rétegről rétegre. Ha minden mágnesezettség azonos irányú lenne, akkor a Parratt-módszert is használhatnánk az ezzel azonos vagy ellentétes spinű neutronok reflektivitásának meghatározására. Mágnesezettség nélkül a különböző spinű komponensek terjedése és visszaverődése nem tér el egymástól, ezért a 4×4 -es szupermátrixok helyett 2×2 -esek használhatóak.

2.5 *Spekuláris reflektivitás elmosódott, illetve érdes határfelületek esetén*

Valójában két réteg közti határ lehet éles, de lehet elmosódott is. A diffúzió a két réteg között életlen, lassú átmenethez vezet, de a határfelület lehet érdes is. Ez a két lehetőség spekuláris reflektometriával gyakorlatilag nem különböztethető meg egymástól. Kinematikus közelítésben a spekuláris reflektivitás csak a minta síkjával párhuzamosan átlagolt $\rho(z)$ szóráshosszsűrűségtől függ, és az alább részletezett okokból ez igaz akkor is, amikor a kinematikus közelítés már nem érvényes.

Mikroszkopikus ismeret hiányában a $\rho(z)$ -t a határréteg közelében általában Gauss-féle hibafüggvénnyel közelítjük, és ennek szélességét nevezzük a határfelület elmosódottságának.

A továbbiakban a felületi érdeességnek a reflektivitásra gyakorolt hatását tárgyaljuk. Nevezzük z -nek a reflektáló felületre merőleges irányt. Az érdes felület z koordinátája egy adott pontnál $\delta z(r)$ mértékkel tér el az átlagától. A $\delta z(r)$ négyzetének várható értékét

nevezzük érdességnek:

$$\sigma^2 = \langle \delta z^2(\underline{r}_{II}) \rangle. \quad (14)$$

Attól függően, hogy a határfelületen z gyorsan, vagy lassan változik, eltérő módon kell eljárni a hullámfüggvények és deriváltjaik folytonosságának vizsgálatánál¹⁷. Ha a minta síkjában a határfelületen haladva viszonylag lassan változik a z koordináta, akkor a határfelület egyes felületelemeire végezzük a függvények illesztését, mint a sík határfelületekre. Az egyes felületelemekről a Fresnel-együtthatónak megfelelő amplitúdóval verődik vissza a hullám, de fázisuk különböző lesz eltérő helyzetük miatt. Az összegzést és átlagolást elvégezve a Debye-Waller faktorhoz hasonló lecsökkent reflektivitást kapunk:

$$r = r_{id} \exp(-2k_0^2 \sigma^2) \quad (15)$$

A reflektometriában a másik határesetet, a gyorsan változó z -re kapott Nevot-Croce szorzófaktorokat¹⁸ alkalmazzák, amelyeket úgy kapunk, hogy az átlagolt amplitúdókra írjuk fel a folytonossági feltételeket.

$$r = r_{id} \exp(-2k_0 k_1 \sigma^2) \quad (16)$$

$$t = t_{id} \exp[(k_0 - k_1)^2 \sigma^2 / 2] \quad (17)$$

Mivel a reflektometriában az érdesség laterális méretei akkorák, hogy a diffúziós esettel azonos eredményt adó Nevot-Croce faktorokat kell használnunk, ezért gyakorlatilag nem különböztethető meg a diffúzió hatása és az érdesség.

A két formula egymásba való átmenetelét, mikor számít lassúnak vagy gyorsnak az érdesség változása, a későbbiekben részletezendő Torzított Hullámú Born Közelítés (DWBA) másodrendig való kifejtéséből kapható meg.¹⁹ A (15)-(17) kifejezések csupán közelítések, ez látszik abból is, hogy az anyagmegmaradás törvényét sértik.

A felület, vagy réteghatár hullámossága („waviness”) alatt is annak síktól való eltérését értjük, de a hullámosság a felület domborzatának hosszú hullámú összetevője, aminek leírására már a geometriai optikát lehet használni. Ez azt jelenti, hogy nincsen interferencia az eltérő magasságú pontokról szórt hullámok között. A hullámosságra jellemző laterális méretek a koherenciahossznál nagyobbak. (A koherenciahossz definíciójával és nagyságával a 3.9. fejezetben részletesen foglalkozom.).

2.6 A spekuláris mérések gyakorlati kérdései

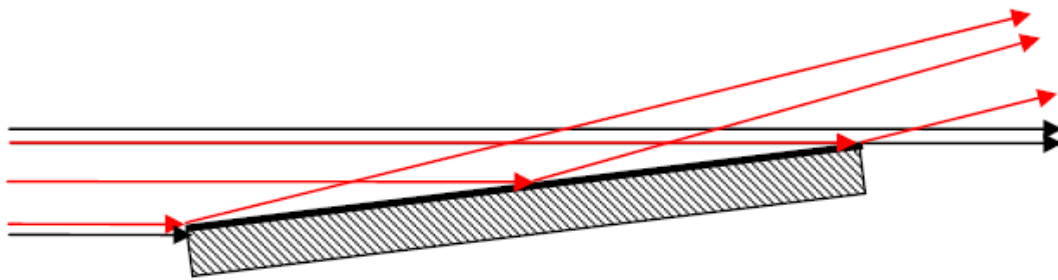
A spekuláris neutronreflektometriában a hullámszám-vektor felületre merőleges összetevőjének, $k_z = (2\pi/\lambda)\sin\theta_{\text{in}}$ -nak függvényében detektáljuk a minta által visszavert neutronokat. A reaktor hűtővizében, és ha van, a hidegforrásban termalizálódott neutronok hullámhosszeloszlása folytonos, közelítőleg a Maxwell eloszlással írható le, illetve ezek összegeként állítható elő²⁰.

Egy adott hullámhosszat kétféle módon lehet kiválasztani, repülési idő és szórási szög alapján. Az előbbi a repülésiidő- („Time Of Flight”, TOF-) módszer, amelynek során a nyalábot megszaggatjuk („chop”), és a choppertől mért távolság és a választott repülési idő ismeretében a hullámhosszat meghatározzuk. A másik módszer a nyaláb valamely ismert egykristályon, vagy mesterséges multirétegen való monokromatizálása a Bragg-visszaverődést felhasználva. Az általam használt neutronreflektométerek pirolitikus grafit kristálymonokromátorral működnek.

A monokromátorok nem tökéletes egykristályok, mozaikkristályok, azaz kissé eltérő orientációjú, kicsiny egykristályok halmazai²¹. A mikrokristályok orientációjának szórását a kristály mozaicitásának nevezzük.

A nyalábot neutronelnyelő anyagból (Cd, B, Gd) készült, illetve azzal bevont résekkel kollimálják. A mérési adatok kiértékelésénél a k_z bizonytalanságát is figyelembe kell venni.

A kísérleti reflektivitásgörbét a minta véges méretéből eredő geometriai („lábnyom”- „footprint”-) hatás is torzítja, amelyet a 3. ábrán szemléltetnek. Kis szögeknél ugyanis a nyaláb egy része a minta mellett elhaladva, közvetlenül érkezik a detektorba. Más része nem a minta vizsgálandó felületére, hanem oldalába érkezik, és elnyelődik. Ennek a két résznek az aránya csökken a beesési szög növelésével. A nyalábnak a minta felszínére érkező hányada pedig a beesési szöggel lineárisan nő. Miután a minta felülete teljesen fedi a beeső nyalábot, már nem kell számolni ezzel a hatással. A mért görbe elejének torzulását befolyásolja az is, hogy a minta forgástengelye mennyire esik pontosan a rések középvonala által meghatározott síkba.



3. ábra: A mért reflektivitásgörbét torzító geometriai ("lábnyom"- "footprint") hatás. A nyilakkal ábrázolt nyalábnak csak a pirossal jelölt hányada szóródik a minta felszínén.

3 Offspekuláris neutron- és röntgenszórás

A határfelületi érdességről az offspekuláris szórásból szerezhethetünk alaposabb információt, hiszen ennek egyedüli forrása a minta laterális inhomogenitása. Mivel a rétegrendszerek határfelületeinek alakja a létrehozásukkor bekövetkező véletlenszerű folyamatokat tükrözik, ezért a határfelületi érdesség statisztikus jelleggel írható le.

3.1 A szóródást leíró Schrödinger-egyenlet

Noha neutronokról és Schrödinger-egyenletről írok, az alábbi gondolatmenet alkalmazható minden hullámegyenlettel leírható sugárzásra és törésmutatóval leírható közegre, így az off-spekuláris röntgenszórásra is.

Ha a minta szóróhosszsűrűsége csak a felületre merőleges irányban változik, és a szerkezet réteges, akkor a hullámfüggvény és a reflektivitás a Parratt-, vagy a mátrixmódszerrel számolható. Ehhez a megoldott feladathoz képest az érdességet perturbációnak tekintjük.

A síkbeli eltolásra szimmetrikus, réteges szerkezet V_{ref} potenciáljától való eltérést a $\delta V(r)$ tag tartalmazza.

$$V(\underline{r}) = V_{ref}(\underline{r}) + \delta V(\underline{r}) \quad (18)$$

Ekkor a Schrödinger-egyenletet így írhatjuk:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \Psi(\underline{r}) + V_{ref}(\underline{r}) \Psi(\underline{r}) - E \Psi(\underline{r}) = -\delta V(\underline{r}) \Psi(\underline{r}) \quad (19)$$

Ha a jobb oldal nulla lenne, a spekuláris eset egyenlete állna előttünk, amelynek $\Psi_{ref}(\underline{r})$

megoldását a Parratt-, vagy a mátrixmódszer nyújtja. A jobb oldalon lévő tag, $\delta V(\underline{r})\Psi(\underline{r})$, az inhomogenitásokon szóródó hullám, az offspekuláris szórás forrása.

Az egyenlet megoldására a reciprocitási tételt használjuk fel^{22,23}. Legyen két, a (19) alatti Schrödinger-egyenlettel leírható rendszerünk, amelyek csak a forrásnak megfelelő, jobb oldali tagban térnek el egymástól!

$H_{id}(\underline{r})\Psi_i(\underline{r})=A_i(\underline{r})$ ($i=1$ vagy 2 , a vizsgált rendszernek megfelelően).

$\Psi_i(\underline{r})= \Psi_{ref\,i}(\underline{r})+\delta\Psi_i(\underline{r})$, ahol a $\Psi_{ref\,i}(\underline{r})$ a forrás nélküli egyenlet valamely megoldása.

A tétel szerint (felhasználva, hogy a referenciaállapotok a homogén egyenlet megoldásai, és hogy véges vizsgált rendszer esetén a hullámfüggvények a végtelenben legalább $1/r$ szerint eltűnnek):

$$\int d\underline{r} A_1(\underline{r}) \delta\Psi_2(\underline{r}) = \int d\underline{r} A_2(\underline{r}) \delta\Psi_1(\underline{r}) \quad (20)$$

Az első rendszerben legyen a forrástag a megoldandó feladatnak megfelelően a laterálisan inhomogén $\delta V(\underline{r})$ potenciál és a rajta szóródó teljes $\Psi_1(\underline{r})$ hullámfüggvény szorzata, azaz $A_1(\underline{r})= \delta V(\underline{r}) \Psi_1(\underline{r})$!

A második esetben helyezzünk a detektor \underline{R} helyére egy $A_2(\underline{r})=\delta(\underline{r}-\underline{R})$ pontforrást! A két rendszerre alkalmazva a tételt megkapjuk az inhomogenitások által szórt hullám értékét a detektor helyén.

$$\delta\Psi_1(\underline{R}) = \int d\underline{r} \delta V(\underline{r}) \Psi_1(\underline{r}) \delta\Psi_2(\underline{r}) \quad (21)$$

A detektor a mintamérethez képest távol van, ezért a gömbhullámok helyett a minta helyén egyszerűen a mintára eső síkhullámmal dolgozhatunk, és a $\delta\Psi_2(\underline{r})$ hullámfüggvényt a Parratt-, vagy mátrixmódszerrel számolhatjuk.

3.2 A torzított hullámú Born-közelítés (DWBA)

A (21) összefüggés nem közelítés, az a (19) probléma pontos megoldása, de további feltevés nélkül használhatatlan. Ugyanis a jobb oldalon nem az ideális felületekre számolható, hanem a teljes hullámfüggvény szerepel, éppen ez az, ami ismeretlen. A torzított hullámú Born-közelítés („Distorted Wave Born Approximation”, DWBA^{24,25,26,27}) első rendjében a hullámfüggvényt az ideális réteges szerkezetre számolttal (Parratt-formulával vagy mátrixmódszerrel) helyettesítjük. Azzal, hogy a közelítés első rendjénél megállunk, a laterális inhomogenitásokon való többszörös szóródást elhanyagoljuk.

A detektorra időegység alatt $|\partial\Psi_1(r)|^2 vA$ neutron érkezik, ahol A a detektorfelület, v pedig a neutronok sebessége. Ezek alapján a differenciális hatáskeresztmetszet

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = 4\pi \left| \int \delta\rho(r) \Psi_{2P}(r) \Psi_{1P}(r) dr \right|^2 \quad (22)$$

A potenciálról itt áttértem a szóráshosszsűrűségre, ami vonatkozhat mind neutronra, mind röntgenre. A hullámfüggvények indexében szereplő P betű a perturbálatlan függvényekre utal.

Látható, hogy a (22) összefüggésben a forrás és a detektor iránya (1-es és 2-es alsó index jelöli) szimmetrikusan szerepel. Eszerint ha például rögzítem a detektort, és a mintát forgatom, az észlelt offspekuláris szórási kép szimmetrikus a spekuláris csúcsra. Ez nem csak a DWBA közelítés eredménye, hanem a reciprocitási tétel következménye.

A fenti megfontolásban nem használtuk ki, hogy a beérkező és kimenő nyaláb a felület normálisával egy síkban van, ezért érvényes a reflektometria és kisszőgű szórás összeházasítását megvalósító Grazing Incidence Small Angle Scattering-re (GISAS) is. A szórási hossz laterálisan inhomogén része, amit az offspekuláris szórással vizsgálunk, nem csak a felületi érdekességből, hanem többféle okból eredhet (pl. zárványok, szomszédos réteg anyagának szemcsehatármenti diffúziója a rétegbe, stb.).

3.3 Érdes rétegrendszer diffúz szórásának számítása

Alább érdes multirétegekre alkalmazzuk a DWBA-t a k_{in} -re (k_{in} a mintára érkező neutronok hullámszámának a felületre merőleges összetevője). Az érdekesség nélküli esetre számolt hullámfüggvény j -edik réteg felett befelé haladó komponensének amplitúdóját $U_j(+k_{in})$ -val, a kifelé haladóét pedig $U_j(-k_{in})$ -val jelölöm és a z koordinátát az adott határfelületről mérve számítom. Hasonló jelöléseket alkalmazok a megfigyelt diffúz szórás irányának megfelelő k_{out} hullámszámra kapott hullámfüggvényre is. Ekkor (22) egyenlet alakja:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sum_{m=1}^N \sum_{n=1}^N \sum_{+-} \sum_{+-} \sum_{+-} \sum_{+-} (\rho_{m-1} - \rho_m)(\rho_{n-1} - \rho_n) \times \\ U_m(\pm k_{in}) U_m(\pm k_{out}) U_n^*(\pm k_{in}) U_n^*(\pm k_{out}) Q_{mn}(\pm k_{in\ m} \pm k_{out\ m}, \pm k_{in\ n} \pm k_{out\ n}) \quad (23)$$

A k_{in} és k_{out} melletti, rétegszámra vonatkozó index (Q_{mn} -ban) arra utal, hogy a rétegekben

megtört hullámmal számolunk.

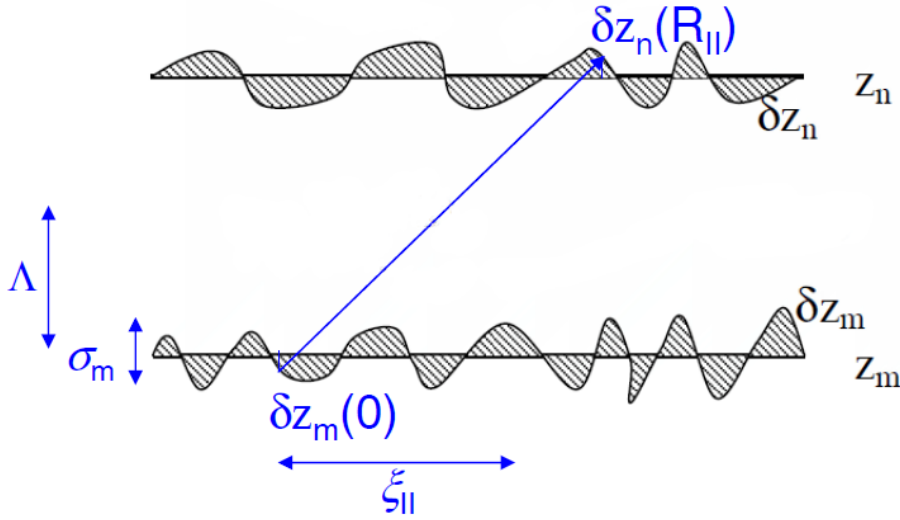
Az egyes rétegek érdekessége közötti korrelációt a

$$Q_{mn}(q_m, q_n, q_{II}) = 2\pi A \frac{\exp[-(q_m^2 \langle \delta z_m^2 \rangle + q_n^{*2} \langle \delta z_n^2 \rangle) / 2]}{q_m q_n^*} \times \int_{A_{koh}} dR_{II} \exp(i q_{II} R_{II}) [\exp(q_m q_n^* \langle \delta z_m(0) \delta z_n(R_{II}) \rangle) - 1] \quad (24)$$

kifejezés írja le. Feltételezzük, hogy a határfelület pontjainak z koordinátái Gauss-eloszlást mutatnak, és azt, hogy a minta síkján belül nincs kitüntetett irány. Itt és a továbbiakban az alsó "II" index arra utal, hogy valamely vektornak a mintafelülettel párhuzamos összetevőjét tekintjük. Feltettük, hogy mind a beeső, mind a szórt állapot jól meghatározott síkhullám. A valóságban ez csak közelítőleg teljesül, mert a nyaláb csupán véges pontossággal kollimált. Emiatt a minta egymástól távoli – a koherenciahossznál messzebb fekvő – pontjairól szóródó hullámok fáziskülönbsége nincs élesen meghatározva, közöttük interferencia nincs. Ezért az integrálást nem a teljes síkra, hanem a kollimáció által meghatározott (részletesebben a 3.9. fejezetben leírt) A_{koh} koherencia-területre kell elvégezni.

3.4 A rétegfelületek domborzati korrelációja

Alábbiakban megvizsgáljuk a réteghatárok saját magukkal és egymással vett $\langle \delta z_m(0) \delta z_n(R_{II}) \rangle$ korrelációs függvényeit! Ez $R_{II}=0$ és $n=m$ esetén az m -edik határfelület σ_m érdekességének (14) szerinti definíciója szerint a σ_m^2 értéket veszi fel. A határfelület egymástól kellően távoli pontjai között már lecseng a korreláció. A síkon belüli korreláció eltűntét jellemző hosszat ξ_{II} -vel jelölöm, és síkbeli korrelációs hosszának („in-plane correlation length”) nevezem. A rétegrendszereket jellemző különböző korrelációs hosszakat az alábbi, 4. ábrán szemléltetem.



4. ábra: A rétegrendszerek korrelált érdességét leíró paraméterek. Az m -edik határfelület érdessége σ_m , a síkbeli korrelációs hossz ξ_{II} , és a másolódási korrelációs hossz Λ .

A m -edik határfelület önmagával vett korrelációját a következő függvény írja le:

$$\langle \delta z_m(0) \delta z_m(R_{II}) \rangle = \sigma_m^2 \exp[-(R_{II} / \xi_{II})^{2h}] \quad (25)$$

A $0 < h < 1$ Hurst-kitevő a felület jellegét írja le. Nagyon élesen változó domborzat esetén a h kicsi, simább felületre a h az egységhez közelebb. A Hurst-kitevő kapcsolatban áll a felület d fraktáldimenziójával, $d = 3-h$.^{24,28}

A rétegrendszer előállításakor a rétegek köztes kontamináció nélkül egymásra rakódnak, ezért domborzatuk általában nem független egymástól. A m -edik réteg felületének $\delta z_m(\underline{r}_{II})$ domborzata részben a réteglelakás során véletlenszerűen keletkező $a_m(\underline{r}_{II})$ érdességből ered, részben az alatta levő $m+1$ -edik réteg felületének másolódásából. A másolódás nem tökéletes, hanem valamilyen $b_m(\underline{r}_{II})$ replikációs függvénnyel való konvolúcióval írható le:

$$\delta z_m(\underline{r}_{II}) = a_m(\underline{r}_{II}) + \int \delta z_{m+1}(\underline{R}_{II}) b_m(\underline{r}_{II} - \underline{R}_{II}) d\underline{R}_{II} \quad (26)$$

Feltesszük, hogy az a és b véletlen függvények statisztikailag függetlenek, és azt, hogy a b replikációs függvény Dirac-delta formájú: $b_m(\underline{r}_{II}) = b_m \delta(\underline{r}_{II})$, más szóval, a replikáció egyforma minden térbeli hullámhossz mellett. A konvolúció Fourier-transzformáltja szorzás, ezért

$$Q_{mn} = Q_{kk} \prod_{n < i < m} b_i \quad (m > n) \quad (27)$$

Ha a b replikációs függvény a rétegvastagság exponenciálisan csökkenő függvénye,

akkor a következő, széles körben sikerrel használt korrelációs függvényhez jutunk^{29,30}:

$$\langle z_m(0)z_n(R_{II}) \rangle = \sigma_m \sigma_n \exp[-(R_{II} / \xi_{II})^{2h}] \exp[-|z_m - z_n| / \Lambda] \quad (28)$$

Az itt szereplő Λ hosszúságot másolódási korrelációs hosszúnak („out-of-plane correlation length”) nevezzük. Ha a felületek másolódása tökéletes, akkor ez végtelen, ha pedig egyáltalán nincs másolódás, azaz a különböző felületek korrelálatlanok, akkor zérus.

A (28) kifejezés az irodalomban széles körben használt „közös korrelációs hossz”-modell^{31,32,33,34,47}.

3.5 Rezonáns diffúz szórás, korrelált inhomogenitások

A rezonáns diffúz szórás^{26,27,35} („Resonant Diffuse Scattering”, RDS) periodikus rétegrendszerek esetén léphet fel, és a határfelületek ismétlődésének mértékére, vagyis a különböző rétegek érdekessége közti korrelációra következtethetünk belőle. Amint az előző, 3.4. fejezetben leírtam, a különböző határfelületek érdekessége nem független egymástól. Szélsőséges esetben, ha a replikáció teljes, az egyes határfelületekről a diffúzan szórt hullám azonos lenne, csak – eltérő helyzetük miatt – a fázisukban lenne különbség. Ha a rétegrendszer periódushossza d , akkor kinematikus közelítésben erősítést kapunk, ha teljesül az alábbi, a Bragg-törvényhez hasonló rezonanciafeltétel:

$$\frac{2\pi}{\lambda} d(\sin \theta_{in} + \sin \theta_{out}) = n2\pi, \quad (29)$$

ahol θ_{in} a beesési, θ_{out} pedig a visszaverődési szög. Ha nem szögek szerint, hanem a q -térképen keressük a rezonancia helyét, akkor az előbbi feltételt célszerű a következő formájúra átalakítani:

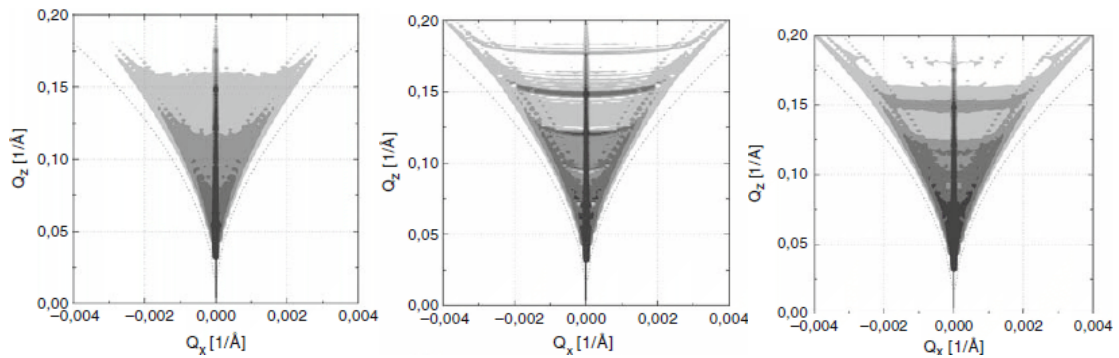
$$q_z = (2\pi / d)n, \quad (30)$$

a rezonanciák helyén a q felületre merőleges összetevője a $2\pi/d$ egész többszöröse, ez a q -térképen az x -tengellyel párhuzamos egyeneseknek felel meg. Ha a rezonanciafeltétel teljesülését kvantitatíve vizsgáljuk, akkor a nyaláb törését is figyelembe kell venni. A dinamikus számolt RDS vonalak a reciproktérbeli szórási képen nem egyenest adnak, mint a kinematikus (29) kifejezés, hanem a hullámtörés következtében görbe vonalakat (5. ábra).

Teljes replikáció esetén a felületek korrelációját egyetlen függvénnyel írhatjuk le, $Q_{mn}=Q(q_1, q_2)$. Így ekkor – a rezonanciafeltétel teljesülése mellett – az N periódusból álló

szerkezet szórási hatáskeresztmetszete N^2 -tel arányos. Ha egyáltalán nincs korreláció az egyes rétegek közt, azaz $Q_{mn}=0$ $m \neq n$ -ra, továbbá az egyes rétegek statisztikailag egyformán írhatók le, akkor a szórási hatáskeresztmetszet a rezonancia helyén is N -nel arányos, ahogy általában is igaz, hogy a határfelületekre külön számolt differenciális szórási hatáskeresztmetszetek összege egyenlő az egész szerkezetével, nincs tehát szórási csúcs.

Általában a diffrakciós csúcsok szélessége függ az ismétlődő egységek számától. A rétegszám végeességéhez hasonlóan a nem tökéletes másolódás is az RDS-csúcs kiszélesedéséhez vezet. Ezt felhasználva a határfelületek közötti Λ másolódási korrelációs hossz megbecsülhető. Ezt illusztrálja a 5. ábra (Daillant és Gibaud nyomán³⁶), amelyen láthatóak a Λ növekedtével megjelenő és egyre élesebbé váló RDS vonalak a (30) összefüggés szerint megközelítőleg $q_z = \text{konst.}$ értékeknél.

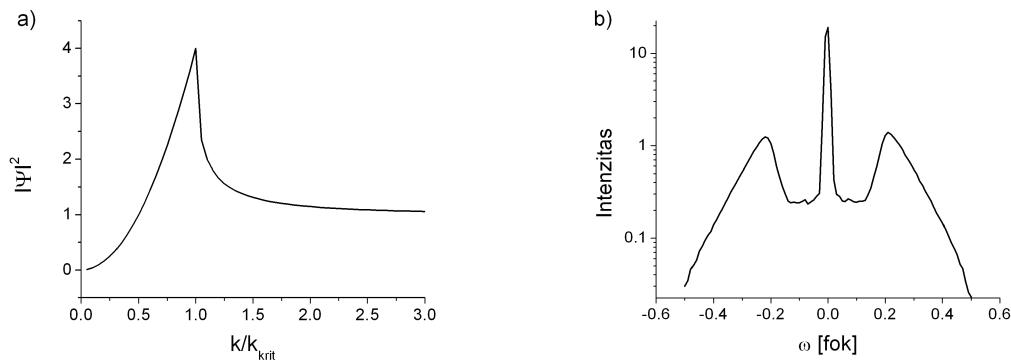


5. ábra: Az RDS vonalak szélessége és a Λ másolódási korrelációs hossz összefüggése. A reciproktér térképén a $[\text{GaAs} (70 \text{ Å})/\text{AlAs} (150 \text{ Å})] \times 10$ rétegszerkezet DWBA módszerrel számolt szórási képét láthatjuk, a rétegek közötti érdeklődés különböző mértékű korrelációi esetére. Az érdeklődés 10 Å és a síkbeli korrelációs hossz $\xi_{II} = 500 \text{ Å}$ minden esetben.

3.6 Yoneda-csúcsok

Az offspekuláris szórási képben megfigyelhető Yoneda-csúcsokról a dinamikus elmélet (DWBA) ad számot. Yoneda észrevette, hogy különféle felületekről a röntgensugarak nem csak a várt spekuláris irányban verődnek vissza, hanem a felülethez képest kritikus szöget bezáró irányban is megfigyelhető csúcs³⁷. A tapasztalat szerint az offspekuláris szórásban csúcs jelenik meg, ha akár a beesési, akár a visszaverődési szög egyenlő a kritikus szöggel. Ha a Fresnel-formulákkal kiszámoljuk a hullámfüggvény abszolút értékét a felületnél, aránylag éles maximumot kapunk a kritikus szögnél. A 6 a) ábrán a

k/k_{krit} függvényében látható a hullámfüggvény abszolútérték- négyzete a minta felületénél. Ennek megfelelően megnő az egyetlen érdes felületről történő diffúz szórás is²⁶, a kritikus beesési szögnél intenzitásmaximumot tapasztalunk. Ez a Yoneda-csúcs. A reciprocitási tétel és (22) alapján ha a kimenő nyaláb szöge egyenlő a kritikus szöggel, szintén csúcsot kapunk.



6. ábra: a) a hullámfüggvény négyzete homogén, sík határfelületű minta felszínénél, a beeső neutronokra vett k/k_{krit} függvényében. b) Mért Yoneda csúcsok (neutron szupertükrő minta, réz $K\text{-}\alpha$ sugárzással mérve). A detektor 1.2 foknál állt, a mintát forgattuk (a szimmetrikus helyzettől való elforgatás szöge ω).

Több rétegből álló minta esetén szintén észleljük a kritikus szögnél a Yoneda-csúcsot. A 6. b) ábrán neutron szupertükrő minta esetén röntgenszórásban megfigyelt Yoneda-csúcsokat láthatunk. A kritikus szöget a 2.4 fejezetben tárgyalt Parratt-módszerrel számolhatjuk, nem túl vastag rétegrendszerre (10) szerint az átlagos szóráshosszsűrűséget használva. Mivel több határrétegen való többszörös visszaverődés eredménye az eredő (laterális inhomogenitásoktól perturbálatlan) hullám, a Yoneda-csúcs mellett egyéb kis csúcsok is megjelenhetnek.

A hullámfüggvény rezonanciaszerű növekedésére jó példa a hullámvezetők esete is, amikor két nagyobb szóráshosszsűrűségű réteg fog közre egy kisebb szóráshosszsűrűségűt. Azoknál a beesési szögeknél, amelyeknél a rétegrendszerben megnő a hullámfüggvény, a spekuláris és offspekuláris szórásban is megfigyelhető a rezonancia. Ha elnyelő anyagot tartalmaz a minta, a hullámfüggvény megnövekedése a minta belsejében az elnyelődés növekedéséhez vezet, ekkor a spekuláris görbében minimumokat láthatunk. A megnőtt hullámfüggvény (23)-nek megfelelően a diffúz szórásban megfigyelhető erősödést okoz^{38,39}.

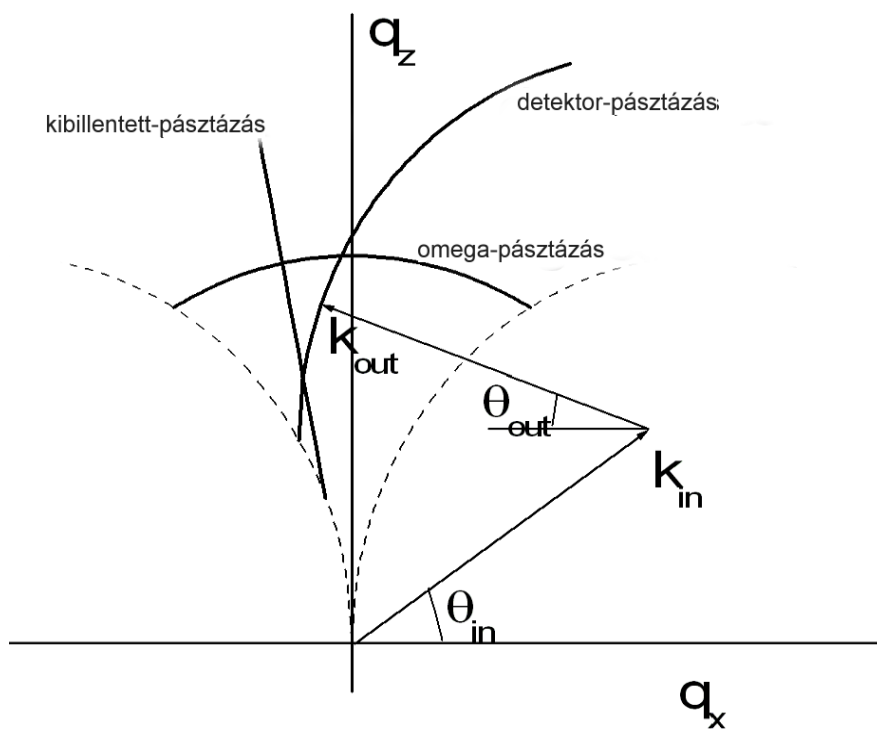
Periodikus rendszereknél a Bragg-feltétel teljesülése esetén megnő a hullámfüggvény, ezért akár a beesési szög, akár a visszaverődési szög megfelel a Bragg-feltétel valamelyik rendjének, rezonanciaszerűen megnő az offspekuláris szórás^{26,27,35}. Az 5. ábrán a periodikus mintán való offspekuláris szórás DWBA szimulációjában megjelennek a dinamikus Bragg-csúcsoknak megfelelő vonalak.

Akárcsak a Yoneda-csúcsok, a hullámvezetőkre kapott és a dinamikus Bragg-csúcsok is csak a dinamikus elmélettel magyarázhatók.

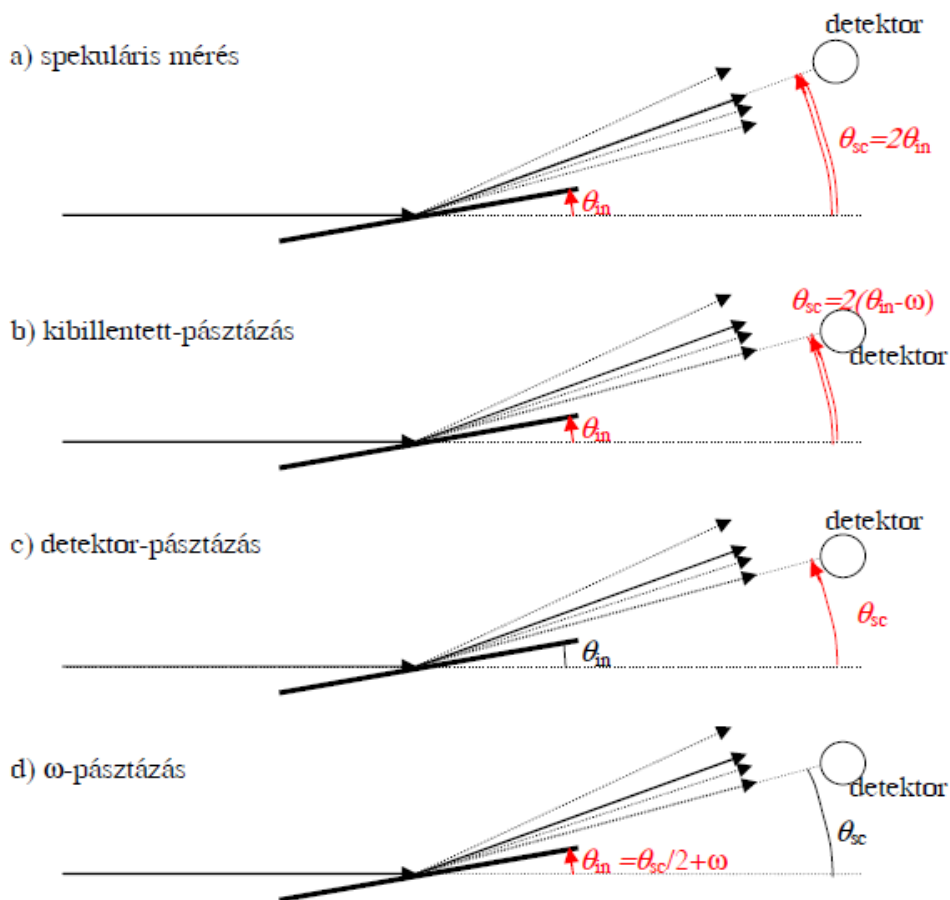
3.7 A reciproktér bejárása offspekuláris mérésekkel

A spekuláris reflektometriában konstans hullámhossz esetén a beesési szöget változtatva, a $q=(4\pi/\lambda)\sin\theta_{in}$ függvényében mérjük a reflektivitást. Offspekuláris mérést sokféle módon végezhetünk, és mindegyik módszerrel a kétdimenziós reciproktérben járunk be egy vonalat, valamilyen felbontással. A 7. ábra segítségével bemutatom, hogy a különféle kísérleti módszerek miképp jelennek meg a reciproktérben^{40,41}. A minta és detektor valós térbeli mozgatását a 8. ábra mutatja. Legyen az x, z sík a beesés síkja, és z legyen merőleges a felületre, θ_{in} a beesési, θ_{out} pedig a visszaverődési szög.

A beeső és visszavert hullám \underline{k}_{in} illetve \underline{k}_{out} vektorának hosszát megszabja a hullámhossz, $k=2\pi/\lambda$. A minta és a (pont- illetve vonalszerű) detektor adott helyzetében a $\underline{q}=\underline{k}_{out}-\underline{k}_{in}$ hullámszámvektor-változáshoz tartozó intenzitást mérjük. Ezt a helyzetet egyértelműen ábrázolhatjuk egy ponttal a síkon, a megfelelő \underline{k}_{in} illetve \underline{k}_{out} vektorokkal együtt. A méréseknél mind a beesési, mind a visszaverődési szög nagyobb nullánál, ezért a 7. ábrán a $(2\pi/\lambda)$ sugarú szaggatott félkörök alatti terület nem figyelhető meg.



7. ábra: a különböző offspekuláris kísérleti elrendezésekkel vizsgált vonalak a reciproktérben.



8. ábra: a különböző reflektometriai mérések megvalósításának sémái. Az ábrán a mérés során állandó értéken tartott szögeket feketével, a változó szögeket pedig pirossal jelölöm. A dupla vonal az egyszereshez képest kétszeres szögsebességű mozgásra utal.

Spekuláris mérés esetén $q_x=0$, a beesési és visszaverődési szög azonos, a detektor szögét a minta szögének elforgatásával egyidejűleg annak kétszeresével változtatjuk.

Ugyanígy mozgatva a mintát és a detektort, de a mintát aszimmetrikusan beállítva, a minta normálisa és a q által bezárt ω kibillentési (offset) szög állandó lesz a mérés alatt. Ez a kibillentett-pásztázás („offset-scan”), amelyet a 7. ábrán egy origón átmenő egyenes jelenít meg. Az egyenesnek a q_z -tengellyel bezárt szöge egyenlő a kibillentési szöggel.

Ha a detektor 2θ helyzetben áll, és csak a mintát mozgatjuk, akkor úgynevezett ω -pásztázást (ω -scan) végzünk. Ekkor q hossza $(4\pi/\lambda) \sin\theta$ állandó, csak az iránya változik a mintához képest. A 7. ábrán ennek origó középpontú körív felel meg, aminek középponti szöge 2θ , és ω -nak a beesési szöget nevezzük, illetve a szimmetria kedvéért a

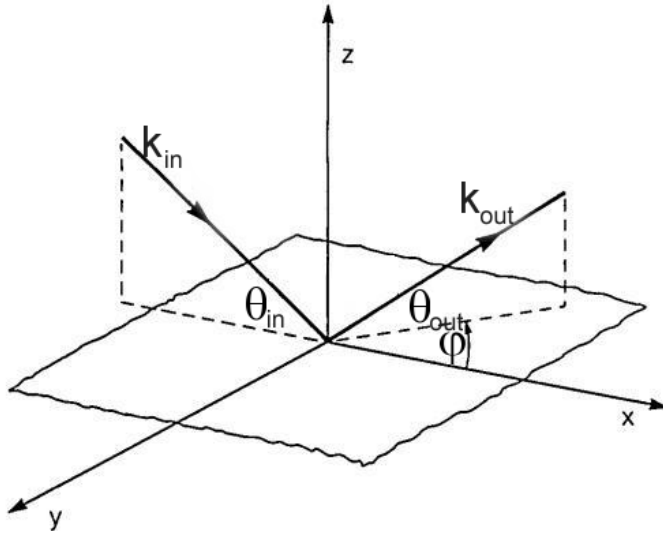
spekuláris csúcs helyét vesszük nullának. Az ω -pásztázásnál (3.6) Yoneda-csúcsok jelennek meg szimmetrikusan a spekuláris csúcs körül, ha vagy a beesési vagy visszaverődési szög megegyezik a kritikus szöggel, ami ábránkon a két szaggatott körív q_z irányú eltolásával kapható meg. Mivel ez a vonal közel merőleges az ω -pásztázás során bejárt útra, ezért az ω -pásztázás igen alkalmas a Yoneda-csúcsok megfigyelésére, amelyeket $\omega = \theta - \theta_c$ szögnél tűnnek fel, mint például a 6. b) ábrán látható röntgenméréseken.

Ha felületérzékeny detektort használunk, akkor adott beesési szög mellett egyszerre több visszaverődési szögnél mérünk. A neutronforrás alacsony intenzitása miatt leginkább ez a módszer használható. Így ugyanazt az eredményt kapjuk, mintha rögzített beesési szög mellett egy pontdetektort mozgatnánk, azaz detektor-pásztázást (detector scan) végeznénk. Ennek a 7. ábrán egy k középpontú, $2\pi/\lambda$ sugarú körív felel meg.

A 3.5. fejezetben leírt rezonáns diffúz szórás feltétel a (30) kinematikus közelítés szerint a 7. ábrán egy vízszintes vonal. Ha a törést is figyelembe vesszük, akkor ezen vonalak helye módosul, és a szimmetriatengelytől távolodva – ahogy a törés szerepe egyre nagyobb lesz – a vonalak elgörbülnek. A detektor-pásztázás és a kibillentett-pásztázás nagyjából merőlegesen metszi ezeket a vonalakat, ezért ilyenkor a különböző rétegekben lévő laterális inhomogenitások korrelációját jelző rezonáns diffúz szórás jól megfigyelhető csúcsot ad. Ennek szélessége arra utal, hogy hány rétegen keresztül, milyen mértékben másolódik valamely inhomogenitás, például a felületi (határréteg) érdekesség.

3.8 A véges kollimáció hatása az offspekuláris mérésekre

A következő, 9. ábrán az offspekuláris szórás geometria viszonyait vázolom. A beeső nyaláb a minta felszínével θ_{in} , a szóródott pedig θ_{out} szöget zár be. A minta normálisa és a beeső nyaláb, valamint a szórt nyaláb iránya meghatároz egy-egy síkot. E két sík által bezárt szöget nevezzük φ -nek.



9. ábra: Offspekuláris szórási geometria, a beesési és szórási szögek jelölésével.

Ekkor a k -vektor három komponensének változása:

$$\begin{aligned} q_x &= (2\pi / \lambda)(\cos \theta_{out} \cos \varphi - \cos \theta_{in}) \\ q_y &= (2\pi / \lambda) \cos \theta_{out} \sin \varphi \\ q_z &= (2\pi / \lambda)(\sin \theta_{out} - \sin \theta_{in}) \end{aligned} \quad (31)$$

A reflektometriai kísérletek során az összes itt szereplő szög kicsi, ezért a szögfüggvények az első el nem tűnő tagig elmenő sorfejtésükkel közelíthetők.

A legtöbb esetben feltételezhetjük, hogy a minta szimmetrikus a normálisára vett elforgatásra, ezért fizikai jelentősége csak a q felülettel párhuzamos $q_{||} = \sqrt{q_x^2 + q_y^2}$, és felületre merőleges q_z összetevőjének van.

A kollimációt biztosító rés y -nal párhuzamos. A q_y arányos φ -vel, q_x pedig négyzetesen függ a beesési és visszaverődési szögektől. Az y -irányú kollimáció hiányában így a nyalábban jelenlévő különböző q_y -ok tartománya jóval szélesebb, mint a kísérleteink során bejárt q_x -ek tartománya. Tehát ha például egy detektor-, vagy kibillentett-pásztázás során egy RDS csúcsot metszünk, akkor az nem egy jól meghatározott $q_{||}$ -hoz, azaz meghatározott térbeli hullámhosszú érdekességhez tartozik, hanem sokféle hullámhosszú érdekesség átlagos viselkedését tükrözi.

Megjegyzendő, hogy GISAS (Grazing Incidence Small Angle Scattering) geometria esetén ez a probléma nem merül fel, a beeső nyaláb nem csak egy irányban, mint rések

használata esetén, hanem mindkét irányban kollimált, így q mindhárom irányú összetevőjét ismerjük.

Részben a hullámhossz bizonytalansága, részben a szögbizonytalanságok miatt az offspekuláris mérések felbontása is véges. A beeső nyaláb bizonytalansága a véges kollimációból ered, a visszavert nyalábnál pedig vagy szintén a kollimáció, vagy a detektor helyfelbontása szabja meg a bizonytalanságot.

A differenciális szórási hatáskeresztmetszet \underline{k} és \underline{k}' függvényeként kiszámolható a (22) kifejezés alapján, és adott detektorméret és mintára eső I_0 intenzitás mellett \underline{k} és \underline{k}' függvényeként megkapható az ideális esetben detektálható intenzitás is. Ehhez hozzáadandó még a spekuláris csúcsnak megfelelő $I_0 R(k_z) \delta(\underline{k} - \underline{k}')$ Dirac-delta csúcs. A pásztázás paramétere (pl. detektorszög a detektor-pásztázásnál) függvényében a felbontást kiszámolva, és az ideális függvényt a felbontásnak megfelelő szélességű normált Gauss-görbével konvolválva, a kísérlet geometriai viszonyainak megfelelő lábnyomkorrekcióval (3. ábra) és figyelembe véve a kiküszöbölhetetlenül jelen lévő háttérrel, megkapjuk a várható off-spekuláris görbét, amit összevetünk a megfelelő szög függvényében mért offspekuláris szórással.

3.9 Koherenciahossz

A reflektometriai kísérleteknél a hullámvektor megváltozása a véges pontosságú kollimáció és monokromatizálás miatt nincs teljesen meghatározva, ezért a tér két pontjából szóródott hullám fáziskülönbsége véges pontossággal meghatározott. Ha a két pont elég messze van egymástól, akkor a bizonytalanság eléri a 2π értéket, és az interferenciakép elmosódik, a szórási kísérlet csak kisebb távolságokon belüli korrelációkról nyújt információt. Ezt a távolságot nevezzük koherenciahossznak. Például egy offspekuláris reflektometriai mérésnél a minta koherenciahossznál nagyobb síkbeli korrelációs hossza nem határozható meg a megfigyelt szórási kép alapján, a koherenciahossznál "levágás" van. Vagy például diffrakciós kísérletben a koherenciahossznál nagyobb szemcseméreteket nem lehet egymástól megkülönböztetni. A koherenciahossz értéke mindig az adott kísérlet geometriai viszonyai, felbontása, azaz a q bizonytalansága alapján kapható meg. Mivel ez irányfüggő, a koherenciahossz se

egyforma minden irányban. Egy offspekuláris kísérletnél a minta síkjában a nyaláb (x) irányában a koherenciahossz⁷

$$l_x = \frac{1}{\Delta q_x} = \frac{1}{(2\pi/\lambda)[(\theta_{in}\Delta\theta_{in})^2 + (\theta_{out}\Delta\theta_{out})^2]^{1/2}} \quad (32)$$

Például a 21. ábrán bemutatott, szupertükrön végzett offspekuláris neutron szórási kísérletnél a beesési szög (θ_{in}) bizonytalansága 1 mrad, a visszaverődési szög (θ_{out}) bizonytalansága (a detektor helyfelbontása és távolsága által megszabott) 1,25 mrad. A kísérletnél használt szögek ($9 < \theta_{in} < 21$ mrad és $\theta_{in} < \theta_{out} < 4 \theta_{out}$) esetén a koherenciahossz 2800 és 18000 Å között változik.

A szórási síkra merőleges (y) irányban a szög bizonytalansága nagyjából 10 mrad. A koherenciahossz ebben az irányban jóval kisebb

$$l_y = \frac{1}{\Delta q_y} = \frac{1}{(2\pi/\lambda)\Delta\varphi} \approx 25 \text{ Å}. \quad (33)$$

A koherencia-terület tehát valóban erősen aszimmetrikus. A vizsgált mintákban a laterális inhomogenitások korrelációs hossza sokféle lehet. A hullámosság a mért spekuláris és offspekuláris reflektivitásgörbéket a nyaláb divergenciájához hasonlóan befolyásolja, mintha véletlenszerű állású tükrök sokaságáról érkező intenzitásokat adnánk össze. A mikroszkopikus érdekesség a spekuláris reflektivitást a Nevot-Croce faktorról változtatja, és a DWBA-val számolható valódi offspekuláris szóráshoz vezet. Az, hogy adott síkbeli korrelációs hosszúságú inhomogenitás hullámosságnak vagy érdekességnek minősül, az az adott kísérleti elrendezésre jellemző koherenciahossztól függ.

4 Neutron szupertükrök

Ebben a fejezetben összefoglalom a munkám fő tárgyára, a neutron szupertükrökre vonatkozó alapvető ismereteket, és a tervezésüknél alkalmazott elméleti megfontolásokat. A szupertükrök olyan rétegrendszer, amelynek közel egységnyi reflektivitású tartománya jelentősen meghaladja a régebben tipikusan használt nikkell bevonatú neutrontükrök kritikus szögét. Az első megoldást Mezei Ferenc javasolta és valósította meg⁴². Rétegpárokból képzett periodikus multiréteg (ami növekvő szög függvényében Bragg-reflexiókat eredményez) helyett lassan növekvő rétegpárvastagságokat használt, ami a a

(Bragg-csúcs)tartományokat a kis szögek irányában egyetlen nagy reflektivitású tartománnyá szélesíti. Adott szóráshosszú anyagokra és határszöghöz Mezei megadja a rétegvastagságok kiszámításának receptjét. Érvelése a kinematikus közelítésen alapult. A korszerű módszerek már a dinamikus elméletet használják. Napjainkban a Mezei ötletét tökéletesítő Hayter és Mook algoritmus⁴³ a legelterjedtebb. Ignatovich és Carron alternatív megoldása⁴⁴ szerint periodikus rétegsorozatok egymás fölé rétegzésével is lehet a Hayter-Mook féle szerkezetekhez hasonló rétegszámú és reflektivitású, gyakorlatban is jól működő tükröket előállítani.⁴⁵ (A következő alfejezetekben e módszereket részletesen tárgyaljuk.) Masalovich módszere⁴⁶ numerikusan a Hayter-Mook recepthez igen hasonló eredményeket ad. Előnye, hogy kevésbé bonyolult, mint a másik kettő.

A neutron szupertükrő határszögének megadásakor a Ni kritikus szögét használjuk egységnek, a következő módon. Egy tükrő mX -es, vagy $m=X$ -es, ha $X = \theta_{\text{critSM}}/\theta_{\text{critNi}}$. Például az egyik legnagyobb határszögű neutrontükrőre $m=6.7$, és rétegszáma 8000 ⁴⁷.

4.1 Kinematikus elmélet, a Mezei-szupertükrő

A hetvenes évek előtt csak monokromátorként alkalmaztak periodikus szerkezeteket. Mezei Ferenc ötlete volt, hogy réteges szerkezetek alkalmazásával növeljék meg a neutron visszaverődés határszögét^{42,48}.

Először a periodikus rétegrendszerrel való visszaverődést vizsgáljuk a kinematikus elmélet keretei között. Ezalatt azt értjük, hogy elhanyagoljuk a neutronnyaláb törését a rétegek közötti határfelületen, továbbá nem tekintjük a bejövő nyaláb elnyelés, vagy szórással történő intenzitásváltozását sem. A d vastagságú rétegpár tagjai között a kontrasztot, a szóráshosszsűrűség-különbséget $\Delta\rho$ -val jelöljük.

Az első Bragg-csúcs ($q = 2\pi/d$) reflektivitása a kinematikus elméletben:

$$R = N^2 \Delta\rho^2 d^4 / \pi^2 \quad (34)$$

Ha 100%-os reflexiót akarunk elérni az első Bragg csúcsnál, akkor a szükséges rétegszám

$$N = \pi / (\Delta\rho d^2) \quad (35)$$

Célunk, hogy sok periodikus szerkezet egymásra helyezésével széles q -tartományban működő neutron-tükrőt hozzunk létre. Túl sok réteg egymásra halmozása azonban nem kívánatos, mert egyrészt megnőne a határfelületek érdessége, másrészt a tükrő anyagában

történő elnyelődés miatt a mélyebben fekvő rétegeket kevesebb neutron éri, és növekedne a γ -sugárzás is.

Mezei Ferenc a következő ötlettel minimalizálta a rétegszámot. Változzék a rétegek vastagsága rétegpárról rétegpárra! A Bragg-helyzetben lévő periodikus szerkezetekkel szemben itt a kissé különböző vastagságú rétegpárokról visszaverődő neutronok fázisa ugyan nem pontosan azonos, de még erősítik egymást. Legyen $d(n)$ az n -edik rétegpár vastagsága (itt a nagyobb n sorszám a vékonyabb rétegeknek, tehát a nagyobb k_{Bragg} -eknek felel meg). A $d(n)$ -nek megfelelő Bragg reflexióhoz $\pm 45^\circ$ -os fázistoláson belül a reflexióhoz hozzájáruló rétegek $N(n)$ száma a következőképpen kapható meg.

Az $n+l$ -edik réteg fázistolása (ki- és bemenet alatt) $\Delta\varphi = qd(n+l) - qd(n) = q \frac{\delta d(n)}{\delta n} l$ -

el tér el a 2π -től. A $d(n)$ -nek megfelelő Bragg-reflexióhoz az n -edik réteg alatt és fölött további $N(n)/2$ réteg járul hozzá. Az $N(n)/2$ -edik réteggig fölgyülemlett fáziseltolódás $-45^\circ = -\pi/4$.

$$-\frac{\pi}{4} = \sum_{l=0}^{N/2} q \frac{\delta d}{\delta n} l = \frac{2\pi}{d} \frac{\delta d}{\delta n} \frac{N^2}{8} \quad (36)$$

Az ebből kapott differenciálegyenlet megoldása ((35) felhasználásával)

$$d(n) = \sqrt{\pi/(8\Delta\rho)} \frac{1}{\sqrt[4]{n}} \quad (37)$$

Mivel a rétegpár Bragg-hullámszáma k_{Bragg} fordítottan arányos d -vel, a legnagyobb k hullámszám, ami mellett még erős visszaverődést biztosít a rétegrendszer, egyszersmind n^4 -nel arányos. Tehát a használandó rétegek száma a kívánt határszög növekedtével rohamosan, negyedik hatvány szerint nő⁴⁸. A szükséges rétegek száma függ a rétegpár anyagától is, n a $\Delta\rho$ szóráshossz-különbség, vagy kontraszt gyökével egyenesen arányos, nagyobb kontrasztú anyagpár alkalmasabb szupertükör készítésére.

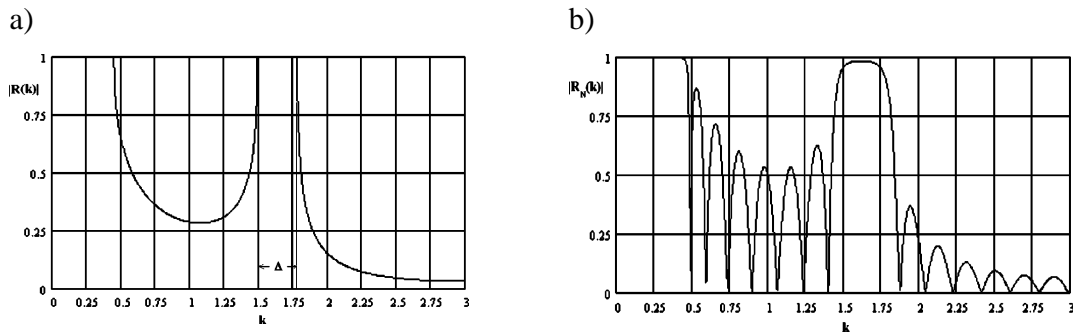
Meg kell még említeni, hogy a fenti levezetésben a $d(n)$ függvénnyel úgy bántunk, mintha deriválható lenne, noha természetesen csak egész n -ekre van értelmezve.

4.2 Periodikus szerkezetek reflektivitása dinamikus megközelítésben

Mivel mindegyik korszerű szupertükör-tervezési módszernél a periodikus szerkezet reflektivitásából indulunk ki, ezért először ezeket vizsgáljuk a dinamikus elmélet keretein belül. Ha a rétegszám végtelen, akkor nem csak a szóráshosszsűrűség által megszabott kritikus szögig van teljes visszaverődés, hanem az első Bragg csúcs körüli Δ_{Darwin} szélességű tartományban is, amit a diffrakció dinamikus elméletében Darwin-platónak neveznek, (10 a) ábra). Ennek szélessége a rétegpár tagjainak anyagától és vastagságától függ. Megmutatható⁴⁴, hogy ez a szélesség akkor a legnagyobb, ha mindkét réteg úgynevezett $\lambda/4$ -es lemez, vagyis a Bragg-szögnek megfelelő beesési szög mellett a rétegen keresztülhaladva a hullám fázisa $\pi/4$ -del tolódik el. Véges, N rétegpárból álló szerkezet reflektivitását a következő formula adja meg:

$$R_N = R_\infty \frac{1 - \exp(2iq_\infty dN)}{1 - R^2 \exp(2iq_\infty dN)} \quad (38)$$

ahol R_∞ a végtelen szerkezet reflektivitása, és annak egy periódusán keresztülhaladva a hullámfüggvény $\exp(iq_\infty d)$ -szeresére változik (q_∞ természetesen komplex). A 10 b) ábra mutatja R_8 -at, azaz egy 8 rétegpárból álló minta dinamikus elmélettel számolt reflektivitását.



10. ábra: a) $N = \infty$ (végtelen) b) $N=8$ rétegpárból álló periodikus rétegrendszer számított reflektivitása (a rétegpár paraméterei a két ábrán azonosak).

A gyártott rétegszerkezetekről a véges rétegszám, abszorpció és a rétegszerkezet tökéletlenségei miatt a gyakorlatban nem kaphatunk teljes visszaverődést. Legyen a célunk az, hogy a teljes visszaverődést ζ pontossággal megközelítsük! Azaz

$$R = 1 - \zeta . \quad (39)$$

Ez a véges szerkezet k_{Bragg} helyen lévő Bragg-csúcsának Δ szélességű környezetében teljesül. Δ a ζ -n kívül az N rétegszámtól és k_{Bragg} -tól is függ.

4.3 A szakaszosan periodikus, Carron-Ignatovich szerkezet

A Carron-Ignatovich módszer⁴⁴ alapgondolata az, hogy periodikus rétegcsomagokat egymásra rakva állítják elő a tükör szerkezetét. Első látásra azért tűnik előnyösnek ez a választás, mert a rétegpárról rétegpárra való vastagság-különbség, amit a többi, aperiodikus recept ad, gyakran rendkívül csekély, az atomi távolságok nagyságrendjébe esik. Például $m3$ -nál (a szupertükör határszöge háromszorosa a nikkelének) két egymást követő Ni réteg vastagságának különbsége nincs 2 \AA se, nagyobb m esetén pedig ennél is kisebb. A nagyobb lépésközü periodikus szerkezet a pontatlan rétegtészítés után jobban hasonlít a tervezettre, mint az aperiodikus, és így azt várhatjuk, hogy a hibák kevésbé rontják le a reflektivitását.

Vizsgáljuk meg, hogy optimális esetben a tükör milyen k_{Bragg} -ű és rétegszámú rétegcsomagokból kell álljon. Adott N rétegpárszám esetén az $R > 1 - \zeta$ a feltétel a Bragg-csúcs körüli $\Delta(N, k_{Bragg})$ szélességű k -tartományra teljesül. A szupertükör tervezésnél N -et úgy kell megválasztani, hogy az egy rétegpárra eső k -tartomány a lehető legszélesebb legyen, vagyis $\Delta(N)/N$ -et kell maximálni. Ez meghatározott ζ mellett akkor teljesül, ha egy periodikus rétegcsomag

$$N = \frac{\ln \zeta}{\sqrt{8} r_{wb}} \quad (40)$$

rétegpárból áll. Itt $r_{wb} = (k_w - k_b)/(k_w + k_b)$ a rétegek közötti határfelület Fresnel-reflektivitása (8), $k_w = \sqrt{k_{Bragg}^2 - 4\pi\rho_w}$, és k_b is hasonlóképpen számolható. Ekkor teljes visszaverődés a tervezett pontossággal a $(k_{Bragg} - \Delta/2, k_{Bragg} + \Delta/2)$ tartományon belül következik be, amelynek a szélessége

$$\Delta = \frac{4\sqrt{2} r_{wb} k_w^2 k_b^2}{\pi k_{Bragg} (k_w^2 + k_b^2)} \approx \frac{\sqrt{2}}{\pi} k_{Bragg} r_{wb} \quad (41)$$

A tükör rétegszerkezetében szereplő rétegcsomagok k_{Bragg} -értékét úgy kell megválasztani, hogy az egymást követő rétegcsomagok által tükrözött k -k tartományai átfedjenek.

4.4 A Hayter-Mook algoritmus

A legelterjedtebb Hayter-Mook szupertükör-tervezési algoritmus szerint az egymást követő rétegpárok vastagságát a következő megfontolással számoljuk ki:

Pontosan a Bragg-helyzetben lévő, végtelen periodikus rendszerben egy rétegpáron áthaladva a hullámfüggvény az

$$e^{iqa} = -k_b / k_w = -(1 - r_{wb}) / (1 + r_{wb}) \quad (42)$$

tényezővel szorozódik. A továbbiakban a $|e^{iqa}| = \kappa$ jelölést használom.

Tekintsünk egy N elemből álló periodikus rendszert, ami Bragg-helyzetben az általunk kívánt ζ pontossággal megközelíti a teljes visszaverődést! Mivel (az abszorpciót elhanyagolva) a transzmisszivitás $t = 1 - R = \zeta$, így $\zeta = |\kappa^N|^2$ -ből N kiszámítható.

A periodikus szerkezet belsejében az átmenő nyaláb intenzitása N rétegpár után κ^N -re változik. Ez a szupertükör nem periodikus, Hayter és Mook szerint a rétegpáron keresztüthaladó hullám nem κ -val, hanem ettől különböző $\kappa' = \kappa^{1/N}$ -val fog szorozódni. Ezután bevezetünk egy r'_{wb} effektív határréteg-reflektivitást a következő összefüggés alapján:

$$\kappa' = -(1 - r'_{wb}) / (1 + r'_{wb}) = \kappa^{1/N} \quad (43)$$

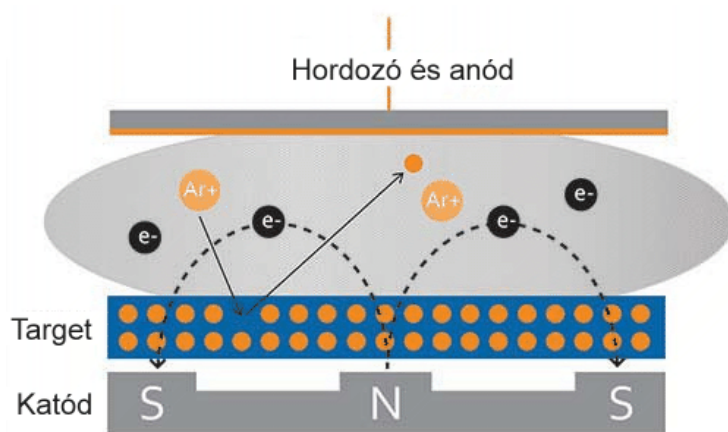
Periodikus szerkezet esetén a Bragg-csúcs félértékszélességét $\cos \varphi_{1/2} = 3r_{wb} / \sqrt{8}$ összefüggés határozza meg, ahol $\varphi_{1/2}$ az egy rétegpáron belüli fázistolódás fele az 50%-os reflektivitás helyén. Ha ezt az r'_{wb} effektív határréteg-reflektivitást használva számoljuk ki, akkor megkapjuk az adott rétegpár által lefedett k -intervallumot, azaz ahol a $\cos \varphi_{1/2}$ ennél kisebb. Az egymást követő rétegpárokat úgy választják meg, hogy k -tartományainak átfedjék egymást. Noha a periodikus esetről Hayter és Mook meglehetősen önkényesen tért át a nem periodikusra, és vezette be az effektív határréteg-reflektivitást, a módszer a gyakorlatban a szupertükrök tervezésére kiválóan bevált.

5 Mintakészítés és mérési eszközök

5.1 Egyenáramú magnetronporlasztó

Munkám során egyenáramú magnetronporlasztással („DC magnetron sputtering”) készült vékonyrétegeket vizsgáltam, ezért ismertetem a mintakészítés módját és eszközét. A mágneses porlasztás a fizikai rétegleválasztási technikák közé tartozik. A porlasztás során a bombázó ionok atomokat és atomcsoportokat ütnek ki egy elektróda felületéből, amelyek aztán lerakódnak a hordozó felületén. A hordozó – a leválasztott anyag olvadáspontjához képest alacsony – hőmérséklete miatt a keletkező réteg amorf vagy apró kristályokból áll. A létrejövő réteg növekedése viszonylag gyors, 1-20 Å/s. A módszer további előnye, hogy nagy rétegfelületek készítésére is alkalmazható.

A porlasztó kamrájában a következő folyamatok zajlanak. A töltőgáz (a kis reaktivitás céljából nemesgáz, gyakran, ahogy esetünkben is, argon; amely időnként adalékot is tartalmaz a jobb rétegminőség elérésére^{49,50}, esetünkben az adalék N₂) ionizálásával plazmát állítanak elő, amiben az elektródák között egyenáram folyik. Az ionizált gáztatomok bombázzák a katód felületét, az innen kiszakadó anyag építi majd fel a hordozón megtapadó réteget. Folytonos működés esetén az ionizáció és az ionok és elektronok eltűnésének (elektródára érkezés, rekombináció) egyensúlyát fenn kell tartani. Az ionizáció az elektromos térben gyorsuló töltött részecskék és a gáztatomok ütközésének következménye. A szabad úthosszat a gáz nyomásának változtatásával lehet szabályozni. Ezenkívül mágneses teret alkalmazva a töltéseket hosszabb útra, spirális pályára kényszeríthetjük, ezzel elkerülhetjük a nyomás növelését. A mágneses teret a katód mögé helyezett állandó mágnesek biztosítják, aminek következtében a plazma a katód felett összpontosul. A katódnak természetesen vezetőnek kell lennie, ezen kívül állnia kell az állandó bombázás okozta felmelegedést (kb. 600 K). A következő, 11. ábrán szemléltetem a magnetronporlasztás folyamatát.



11. ábra: A magnetronporlasztás sémája.

A gáznyomásnak nem csak a kisülés fenntartásában van szerepe, hanem a katódból kilökött atomok szabad úthosszát is csökkenti, mivel azok a gázatomokkal való ütközés következtében energiát veszítenek és el is térülnek. Ez befolyásolja a hordozóra jutó atomok számát, mozgásuk irányának eloszlását, azaz megnöveli azt a térszöget, amelyből érkeznek. Az energiavesztés miatt a felületre érkező atomok mozgékonyasága kisebb, az érkezés helyén tapadnak meg, ez növeli az üregképződés valószínűségét, és csökkenti a felületi diffúziót, ami elsimíthatná a laterális inhomogenitásokat. A túl nagy energiájú atomok ellenben az épülő réteg felszíne alá juthatnak, és emiatt a réteghatárok elmosódnak. A hordozóra kapcsolt feszültséggel is szabályozhatjuk a mozgási energiát, gyakran gyorsítófeszültség (néhányszor tíz - néhány száz V) alkalmazásával növelik az adatomok felületi mozgékonyaságát, és simább határfelületeket kapnak.

Ha a porlasztás 10^{-3} mbar nyomáson történik, akkor a réteg növekedési sebessége 5-7 Å/s. Az általunk használt berendezésben a vákuumot elővákuum-szivattyú után kapcsolt He-krioszivattyú biztosítja. A réteg leválasztásakor a hordozó az álló katód előtti plazmafelhőn halad keresztül. A mozgás sebességével szabályozhatjuk a réteg vastagságát. Az általam vizsgált minták hordozóanyaga float illetve borofloat üveg, felületi érdességük igen kicsi, 2-3 Å körüli.

A mintakészítésben Miskolczi Tibor volt segítségemre, a Mirrotron kft. eszközeivel (részben a Kurt J. Lesker cég gyártmánya, részben hazai fejlesztés és kivitelezés).

5.2 A REF neutron reflektométer

Mivel ezt a berendezést mérési céljaim elérése érdekében jelentős mértékben átalakítottam és fejlesztettem, ezért a műszer leírásának külön fejezetet szentelek.

5.3 A GINA neutron reflektométer

Spekuláris és offspekuláris neutronreflektometriai méréseim egy részét a Budapesti Neutronközpont hidegneutron-csarnokában, a 10/3-as neutronvezetőnél található "GINA" polarizált neutron reflektométeren⁵¹ végeztem. Ez a berendezés állandó $\lambda=4,6$ Å hullámhosszon üzemel, fő alkalmazási területe a mágneses rétegek vizsgálata, de én a polarizált nyaláb opciót nem használtam. A monokromatikus nyalábot 5 egymás fölött lévő, függőleges irányban a minta közepére fókuszáló, $20 \times 20 \times 2$ mm³-es pirografit elem, valamint egy mögöttük lévő, szintén pirografit lap biztosítja. A felharmónikusok kiszűrésére folyékony nitrogénnel hűtött Be szűrő szolgál. A neutronokat ³He töltésű, helyzetérzékeny detektor észleli. A detektorkar mérés közben légpárnás talpakon mozgatható. A berendezésen mérhető legalacsonyabb reflektivitás $\sim 3 \times 10^{-5}$.

5.4 Röntgenreflektométerek

Az MFA (Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Intézet) röntgen reflektométerként is használható berendezésén (Bruker AXS D8 Discover) Horváth Zsolt segítségével jutottam spekuláris mérési eredményekhez, a Természettudományi Kutatóközpontban pedig Bálint Szabolccsal együttműködve egy Philips X'Pert MPD röntgen diffraktométeren kaptam offspekuláris szórási eredményeket. Mindkét berendezés a réz K_{α} vonalán, $\lambda=1,54$ Å hullámhosszon mér. A monokromatikus és jó közelítéssel párhuzamos (0,05 fok divergenciájú) nyalábot Göbel-tükrről (parabolikus felületű rétegrendszeren⁵²) való visszaverődés által kapjuk. A minta közepe, a forgástengely felett, van egy állítható él, amit közvetlen a minta felett rögzítve, lecsökkenthető a terület, amiről a szórt intenzitás érkezik. Ezáltal a háttér/jel arány és a szögfelbontás tovább javul, esetünkben körülbelül 0,01°. A minta által visszavert, illetve szórt nyalábot szcintillációs pontdetektor érzékeli. Ha túl nagy az intenzitás, a detektor védelme érdekében réz fóliával gyengítik a nyalábot.

6 REF reflektométer és felújítása

6.1 A reflektométer a felújítás előtt

A REF neutron reflektométert a Budapesti Neutronközpont hidegneutron-csarnokában 2006-ban telepítettük át a 10/3-as neutronvezetőről a 10/1-es neutronvezetőre. A hidegforrás felől érkező $2,5 \times 10$ cm belső méretű neutronvezető falát $m=2$ szupertükör borítja. A műszer állandó $\lambda=4,28$ Å hullámhosszon működik, amelyet grafit monokromátor biztosít. A kicsatolás helye a hidegforrástól 27 m-re van, a neutronvezető görbülete 4500 m, így nincs közvetlen rálátás a forrásra.

A helyszűke miatt a reflektométer sugarának útját a neutronvezetővel párhuzamosra állítottuk, ehhez szükséges egy második monokromátor, amely az első által 78° -os szög alatt kicsatolt nyalábot párhuzamossá teszi az eredeti iránnyal. A pirolitikus grafit kristályok gyenge minőségűek, 3° -os mozaicitásúak voltak. $7,5 \times 7,5$ cm²-es méretük sem illeszkedett a továbbítani kívánt 10 cm magas nyalábhoz. A használt hullámhossz felharmonikusait egy polikristályos berillium tömb (Bragg-él: 4 Å) szűri ki, amelyet folyékony nitrogénnel hűtünk, hogy minél kisebb legyen a fononszórás miatti veszteség.

A nyalábot két darab, egymástól 2 m-re lévő, 1 mm széles, de állítható kadmium rés kollimálja. A mintatartót függőleges tengely körüli lehet forgatni, $0,055^\circ$ lépéssel, a szögpozíciót indukciós úton működő szögtávadó érzékeli. A minta forgástengelyétől 160 cm-re van a kétdimenziós helyzetérzékeny ^3He detektor, amit a reflektométer áttelepítésekor helyeztünk üzembe. A detektor felülete 20×20 cm², helyfelbontása 1.8 mm. A detektorból érkező anódjelet a vezérlő gép képes volt fogadni, és a detektorfelületre érkező összes neutront a korábbi csődetektor jeléhez hasonlóan számolta. Az idő-digitalizáló átalakító (time to digital converter, TDC) modulba befutó katódjeleket feldolgozva a detektált neutron helyzete meghatározható a késleltető művonalak végein mért időkülönbségekből. A kapott kétdimenziós képét el lehetett menteni a detektorhoz tartozó gépen, de a vezérlő és detektorgép kommunikációja megoldatlan volt, a mérőprogram a régi pontdetektorhoz készült.

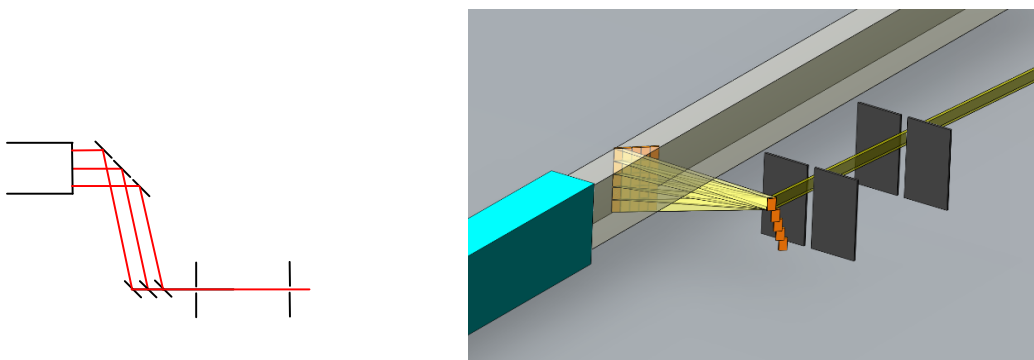
Ebben az állapotban legjobb esetben nagyméretű mintán $2 \cdot 10^{-3}$ reflektivitásig lehetett a berendezéssel mérni. A neutronfluxus a minta helyén ebben az elrendezésben $350 \text{ n/cm}^2\text{s}$ volt.

6.2 A fókuszáló monokromátor

A reflektométer neutron szupertükrök minősítésén felüli használatának fő akadálya a jelhez képest magas háttér volt. A mintára eső neutronnyaláb intenzitásának növeléséhez kicseréltük a monokromátorokat. Az új monokromátorkristályok $0,4^\circ$ mozaicitásúak, nem terítik szét annyira a nyalábot, mint a régiek. Kihasználják a neutronvezető által adott teljes magasságot, valamint speciális fókuszáló geometriájú monokromátorokat terveztem.

A várható intenzitásnövekedés becslésére és az optimális fókuszálási elrendezés meghatározására Monte-Carlo szimulációt végeztem a VITESS szimulációs csomaggal⁵³. A monokromátor számára a forrás méretét és divergenciáját a neutronvezető mérete és bevonata szabja meg. A rések által a mintára engedett nyaláb intenzitását vizsgáltam különféle elrendezések mellett. Összehasonlítási alapként a régi elrendezés estében ($7,5 \times 7,5 \text{ cm}$ -es, 3° fokos mozaicitású kristályok) kapott intenzitást vettem.

A fókuszálással a teljes neutronvezető felületről kell a rések által megszabott keskeny tartományba irányítani a nyalábot. A neutronvezetőnél lévő, belső monokromátor fedi a teljes nyalábot, 5×5 db 2 cm magas, $0,8 \text{ cm}$ széles elemből álló oszlopokat képeztem. A rések előtt lévő külső monokromátor 5 egymás fölötti elemből áll. A belső monokromátor minden oszlopa a külső monokromátor egy-egy elemére fókuszál. Az egyes oszlopok által továbbított nyalábok felülnézetből párhuzamosok egymással, ennek megfelelően a külső monokromátor elemei egymáshoz képest el vannak tolva a rések által megszabott irányban. (12. ábra)



12. a) ábra: A monokromátorok és a rések felülnézetének vázlata. A neutronvezetőből a rések felé tartó sugármenetet pirossal jelöltem. Az áttekinthetőség kedvéért csak három oszlopot ábrázoltam. b) Az új, fókuszáló kettős monokromátor elrendezése. A reflektált sugármenetet csak a belső monokromátor egy oszlopára ábrázolom, egészen a résekig.

Ez az elrendezés a függőleges irányban a divergencia növekedéséhez vezet. Ennek ellensúlyozására a rések közti szakaszra alul és felül m5-ös szupertükröket helyeztem el, ez nem befolyásolja a mérés felbontását. Ezzel az elrendezéssel a modellszámítás szerint a régi monokromátorokhoz képest tizennégyszeres intenzitást lehet elérni. A Monte-Carlo szimulációkkal vizsgált elrendezések közül ez volt az optimális.

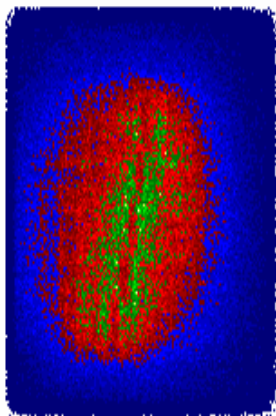
A kristályelemek mozaicitását a reaktorcsarnokban található háromtengelyű spektrométeren Szakál Alex segítségével ellenőriztem. A monokromátor kristályelemeit tartó szerkezetet terveim alapján a Mirrotron Kft. gyártotta. Az egyes kristályelemek alumínium lapocskákra vannak ragaszva, amelyek vízszintes tengelyeken elhelyezkedő gömbcsuklókon állíthatóak. Feltételeztem, hogy a grafit kristály lapkák felülete párhuzamos a Bragg-szórást biztosító (002) kristálysíkkal, az elsődleges beállítás optikai úton történt, ennek a diffúz optikai szórás szabott határt. Egyébként sugárvédelmi okok miatt a neutronokkal végzett állítása során csak a külső monokromátorok elemeihez lehetett hozzáférni. A helyére beszerelt belső monokromátor beállítását úgy ellenőriztem, hogy közvetlenül a külső monokromátor mögé helyzetérzékeny detektort helyeztem, és a külső monokromátorelemekre felerősített kadmium lapocskák által vetett árnyékból volt – mint ahogy a 13. a) ábrán is – látható, a neutronnyalábot a kívánt módon sikerült az elemekre vetíteni.

A szupertükrök és a külső monokromátor optikai beállítása, majd goniométerrel való mozgatása után optimális helyzetben a detektorral mért intenzitás a korábbihoz képest négyszeresére nőtt az elvárt 14-szeres érték helyett. Ennek oka összetett.

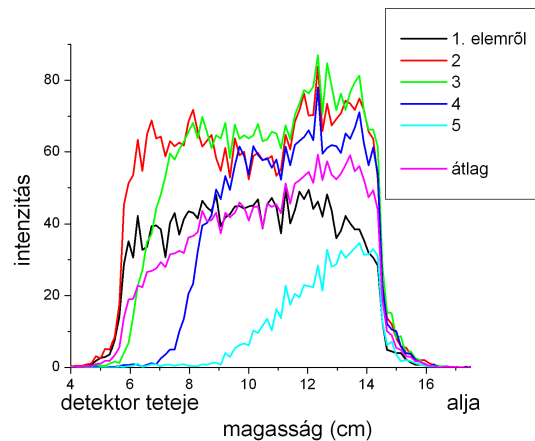
A magyarázat a következő tényeken és feltevéseken alapul. Egyrészt, a kristálysíkok és a felületek síkja nem voltak egymással tökéletesen párhuzamosak, ezért az optikai beállítás nem lehetett tökéletes. Másrészt, a már említett sugárvédelmi okból belső monokromátor kézi igazítása a neutronnyalábban nem volt lehetséges. Harmadrészt a hidegforrásról neutron nyalábot kicsatoló neutronvezető hossza, görbülete és keresztmetszete ($L = 26$ m, $R = 4500$ m, keresztmetszet: $2,5 \times 10$ cm²) nem volt elegendő a nyaláb homogenizálására. Negyedrészt, a használt nyaláb neutronvezetőjének meglévő rajzait tanulmányozva a neutronvezető a hidegforrásnak a legszélét „látja”.

Néhány ellenőrző mérést is végeztem neutronok segítségével, amiből látszik, hogy nem optimális a külső monokromátor beállítása. Ugyanis a méréseknél egyébként is használt helyzetérzékeny detektor képén a beérkező nyaláb alja nagyobb intenzitású, mint a teteje. A külső monokromátor egyes elemei által reflektált neutronok (többi abszorbenssel kitakarva) detektoron való eloszlása a 13.b) ábrán látható. A felső elemek hozzájárulása az intenzitáshoz csekély.

a)



b)



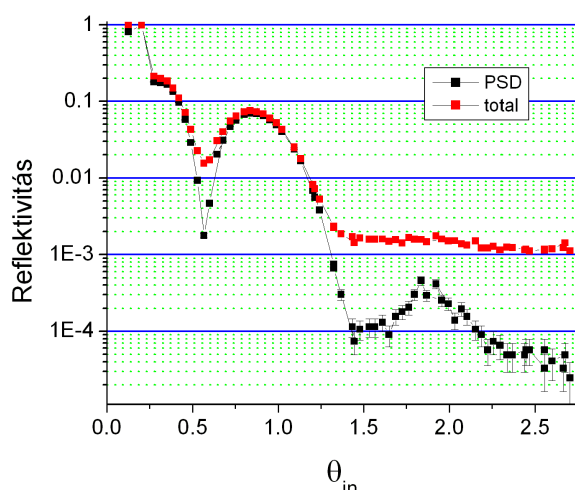
13. ábra a) A nyaláb helyzetérzékeny detektorral megfigyelt képe közvetlen a külső monokromátor mögött. Jól látható a külső monokromátor elemeinek hátán lévő Cd lemezek árnyékai alapján, hogy a belső monokromátorról tükröződött nyaláb intenzitása a külső monokromátorelemeknél a legnagyobb.

b) A külső monokromátor egyes elemeiről a reflektivitásméréseknél használt detektorra vetülő nyaláb függőleges intenzitáseloszlása. Az elemek lentről fölfelé vannak számozva.

6.3 A vezérlés felújítása

A háttér csökkentésére a védelem javítása mellett kézenfekvő a detektor helyfelbontásának kihasználása. A háttér gyakorlatilag egyenletesen oszlik el a teljes detektorfelületen, ellenben a spekuláris jel teljes egésze körülbelül 1/20-nyi felületre esik, figyelembe véve a nyalábméretet és a detektor felbontását is. Tehát a jel-zaj viszony 20-szoros javulásra vezet, ha csak a spekuláris reflexió irányából jövő neutronokat számoljuk.

Új mérőprogramot írtam, ennek segítségével a vezérlő gép parancsokat küld a detektorgéphez, és a mérés minden egyes pontjában automatikusan el lehet menteni a detektorképet. Példaképpen bemutatok egy spekuláris reflektivitásmérést, ahol az egyik esetben nem használtuk ki a detektor helyfelbontását, a másikkban pedig igen, és így a detektor felületének nagy részén gyűjtött eseményeket kivonhattam a mért szórásképből.



14. ábra: vékonyréteg ($2x(Ni\ 84\ \text{\AA}$ és $70\ \text{\AA}\ Ti)$ üveg hordozón) reflektivitása a helyzetérzékeny detektor adatainak feldolgozásával (PSD) és összegző üzemmódban (total).

A 14. ábrán jól látható, hogy a detektor helyfelbontását kihasználva a reflektivitásmérés dinamikus tartományát bő másfél nagyságrenddel sikerült kiterjeszteni.

7 A Ni(Mo)-Ti periodikus rétegszerkezetek jellemzése röntgendiffrakcióval és spekuláris reflektometriával

A magnetronporlasztással készített rétegek hibáit egyszerűbb tanulmányozni, ha több száz rétegből álló szupertükrök helyett egyszerű periodikus rétegrendszereket készítünk és vizsgálunk. Így a reflektivitások illesztésénél viszonylag kevés paramétert kell kezelni. A röntgen- és neutronreflektometria két független mért görbét ad, így a rétegvastagságokról, szóráshosszsűrűségekről és a felület elmosódottságáról megbízható információkat nyerhetünk. Céлом az volt, hogy megállapítsam, mennyire térnek el a gyártott Ni-Ti vékonyrétegek paraméterei az ideálistól, illetve a tervezettől.

7.1 A vizsgált rétegszerkezetek

A különböző vastagságú Ni-Ti rétegpárokból álló periodikus multiréteg mintákat a Mirrotron Kft. készítette egyenáramú magnetronporlasztással (5.1. fejezet). A tervezett rétegvastagságok *a*) $d_{Ni}=66 \text{ \AA}$, $d_{Ti}=59 \text{ \AA}$ (*m2,4*); *b*) $d_{Ni}=84 \text{ \AA}$, $d_{Ti}=70 \text{ \AA}$ (*m2*); *c*) $d_{Ni}=115 \text{ \AA}$, $d_{Ti}=87 \text{ \AA}$ (*m1,6*). Az egyes szerkezeteknél zárójelben feltüntettem, hogy az első Bragg-csúcs a tiszta Ni kritikus szögének hányszorosánál van. A tervezett rétegek $\lambda/4$ -es lemezek, az első Bragg csúcsnál teljesül a $k_{Ni}d_{Ni}=k_{Ti}d_{Ti}=\pi/2$ feltétel, ugyanis ekkor maximális a Bragg-csúcsok magassága és szélessége. Mindhárom rétegpárvastagsággal három-három minta készült, amelyek 2, 4 és 8 rétegpárból állnak. Az alábbi, 2. táblázat tartalmazza a vizsgált periódikus minták rétegvastagságait és periódusszámaikat.

2. táblázat: a vizsgált periódikus $[Ni(Mo)(d_{Ni} \text{ \AA})/Ti(d_{Ti} \text{ \AA})]_N$ minták jele, tervezett rétegvastagságai és periódusszáma.

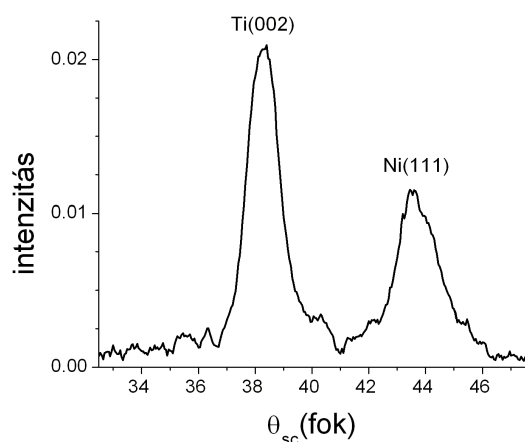
Minta	$d_{Ni}(\text{\AA})$	$d_{Ti}(\text{\AA})$	N
P-a8	66	59	8
P-a4	66	59	4
P-a2	66	59	2
P-b8	84	70	8
P-b4	84	70	4
P-b2	84	70	2
P-c8	115	87	8
P-c4	115	87	4
P-c2	115	87	2

A porlasztott Ni réteg nem tiszta, hanem Mo-t tartalmaz, azért, hogy a tükrök szobahőmérsékleten ne legyenek mágnesesek.^{54,55} A tiszta Ni ferromágneses, és különböző irányú mágnesezettséggel rendelkező mágneses domének jelenléte polarizált nyaláb depolarizációjához vezetne. Nagyjából 12 tömegszázalék Mo-t tartalmazó ötvözet Curie-pontja 100 K alá csökken. Így a gyakorlat szempontjából fontos hőmérséklettartományban az ötvözet mágnesesen nem rendezett. Ugyanakkor a tapasztalat szerint a Ni(Mo) target porlasztásával készült szupertükrök tulajdonságai hasonlóan jók, mint a tiszta Ni-ből készülteké és abban a Ni mikrokristályok mérete is kisebb, ami kisebb határfelületi érdességet eredményez. Meglepő módon, noha a Mo szórási hossza kisebb, mint a Ni-é, mégis a létrejött Ni(Mo) rétegek kritikus szöge a Ni-éhez közel van⁵⁴.

A Ni-Ti szerkezeteket, és az ideálistól való eltérésüket már mások is vizsgálták^{56,57}, de mindig tiszta Ni rétegekkel foglalkoztak. A rétegeket egy esetben⁵⁶ elektronnyaláb-párologtatással készítették, ami kevésbé alkalmas nagy felületű neutronoptikai célú bevonatok gyártására. Mások⁵⁷ nem egyszerű periodikus rétegeket, hanem szupertükröket vizsgáltak, és a nagyszámú, eltérő vastagságú réteg paramétereit nem lehetett illeszteni.

7.2 Röntgendiffrakció

A nagyszögű röntgendiffraktogrammból kristallitok jelenlétére következtethetünk, amelyek a minta határfelületi érdességét növelhetik. (A méréseket Horváth Zsolt Endre végezte az 5.4. fejezetben ismertetett berendezésen, a kiértékeléseket pedig én.) A mintához és a bejövő nyalábhoz képest spekulárisan elrendezett helyzetérzékeny detektor képen széles csúcsok látszottak 38,3 és 43,7 foknál, a Ti(002) és Ni(111) reflexióknak megfelelően (15. ábra). Nagyobb rétegszámnál és vastagságnál a csúcsok jobban megfigyelhetők voltak. A Ti csúcs intenzitása volt a nagyobb, ellentétben az elektronnyalábpárolgattással készült mintákra leírt eredménnyel⁵⁶. de ez egyszerűen különböző texturáltság eredménye is lehet. A vonalszélesség alapján kiszámolt kristallitméret a titánra 77 Å, nikkelle pedig 66 Å a P-a8 minta mindkét anyagára kisebb, ami a megfelelő rétegvastagság (87 és 115 Å).

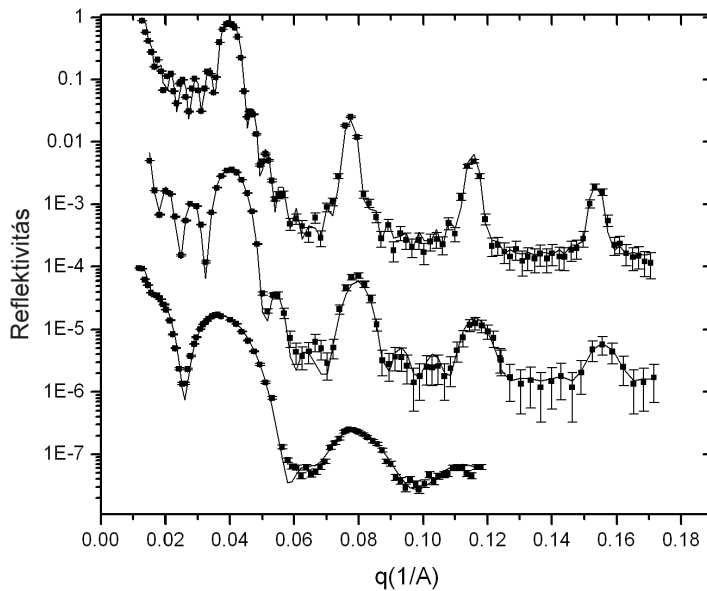


15. ábra: A P-a8 ([Ni(115 Å)/Ti(87 Å)]₈) mintán mért röntgendiffrakciós csúcsok.

7.3 Neutronreflektometria

A minták spekuláris neutronreflektivitását a GINA reflektométeren mértem (5.3. fejezet). A 16. ábrán látható a 84 Å-ös Ni és 70 Å-ös Ti rétegpárokból álló (P-b8, P-b4 és P-b2 jelű) minták mért és illesztett reflektivitása $q=(4\pi/\lambda)\sin\theta$ függvényében ($\lambda=4,6$ Å). A

mérési pontoknál a statisztikus hibát ábrázoltam. Az ettől különböző rétegvastagságú mintákra kapott ábrák is hasonlóak.



16. ábra: A $[Ni(84 \text{ \AA})/Ti(70 \text{ \AA})]_N$ tervezett rétegpárvastagságú minták ($P-b8$, $P-b4$ és $P-b2$ a 2. táblázat jelölése szerint) mért és illesztett neutronreflektivitása. Felülről kezdve $N=8$, 4 és 2 rétegpár reflektivitása látható, az áttekinthetőség kedvéért függőleges irányban eltolva.

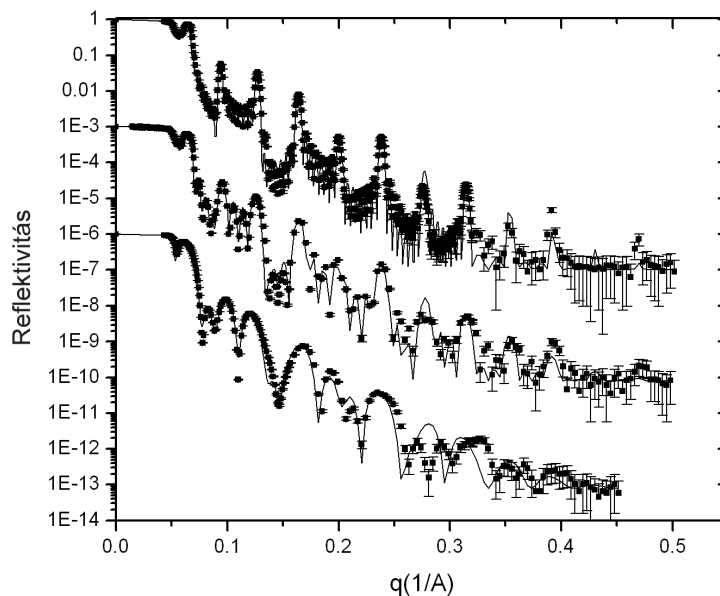
Az illesztett görbéket a Parratt-módszerrel (12) számoltam, a berendezésre jellemző felbontás figyelembevételével. A felület elmosódottságának hatását, ami spekuláris méréseknél egyaránt jelenthet ténylegesen érdes felületet és a rétegek egymásba diffundálását, a (16) és (17) alatti Nevot-Croce szorzótényezőkkel vettem figyelembe az egyes határfelületek reflektivitásában és transzmisszivitásában.

Az egyes Ni, illetve Ti-rétegek szóráshosszsűrűségét azonosan tartottam, és a vastagság szórást is elhanyagoltam. Az alsóbb rétegek érdekessége viszont befolyásolni tudja a fentebbiekét. A rétegek növekedése a minta felmelegedésével jár, ami növeli a diffúzió sebességét. A Ni és Ti rétegekben való diffúzió sebessége sem azonos, az egyes rétegekben más lehet a szemcsehatárok gyakorisága, ez is befolyásolhatja a diffúziót. Végül az illesztésben nem vettem független paraméternek az összes határfelület

elmosódottságát, hanem csak a Ni/Ti és Ti/Ni típusú határokat különböztettem meg, egyébként periodikus szerkezetekkel számoltam.

7.4 Röntgenreflektometria

A 17. ábrán ugyanazon minták röntgenreflektivitása látható, mint a neutronok esetében (16. ábra), szintén q függvényében ($\lambda=1,54 \text{ \AA}$), a méréseket Horváth Zsolt Endre végezte az 5.4. fejezetben leírt berendezésen.



17. ábra: A $[\text{Ni}(84 \text{ \AA})/\text{Ti}(70 \text{ \AA})]_N$ minták (P-b8, P-b4 és P-b2 a 2. táblázat jelölése szerint) mért és illesztett röntgenreflektivitása. Felülről kezdve a $N=8, 4$ és 2 rétegpár reflektivitása látható, az áttekinthetőség kedvéért függőleges irányban eltolva.

A kiértékelésnél és az illesztési paraméterek megválasztásánál a neutronreflektometriai mérések kiértékelésével azonos módon jártam el.

7.5 A kapott eredmények és értékelésük

Számolásomban a rétegvastagságok, a szóráshosszsűrűségek valós része, a Ni-en Ti és Ti-on Ni határfelületek elmosódottságai voltak az illesztési paraméterek. A mérési pontok

és az illesztési paraméterek valamilyen p értéke mellett számolt reflektivitás illeszkedését a $\chi^2(p)$ függvénnyel írhatjuk le.

$$\chi^2(p) = \sum_i \frac{(R_{i \text{ meas}} - R_{i \text{ calc}}(p))^2}{s_i} \quad (44)$$

Itt az i index a mérési pontokon fut végig, és az s_i szórás az egyes mérési pontoknál kapott beütésszámból kapható. Minél kisebb χ^2 értéke, annál valószínűbb, hogy az adott paraméterekkel rendelkező mintáról ilyen mérési eredményeket kapunk, tehát ennek keressük a minimumát. Ez a függvény az illesztési paraméterek terében feltehetőleg sok lokális maximummal rendelkezik, ahol nem szabad, hogy csapdába kerüljön az illesztési folyamat. Ha a neutronos és röntgenes mérésekre végzett illesztés hasonló vastagságot és elmosódottságot ad, akkor jó eséllyel megbízható az illesztésünk. A lokális minimumok elkerülése céljából programot írtam, mely a paramétertér kiválasztott tartományát adott lépésközzel bejárta, és a $\chi^2(p)$ minimumát kereste. Itt a Bragg-csúcsok intenzitása és pozíciója volt az a paraméter, amire végeztem az illesztést. Végül a Parratt-szoftverrel finomítottam az illesztés eredményén. A kapott illesztési paraméterek hibáját az alapján lehet becsülni, hogy az adott paraméterrel eltávolodva a minimumtól, milyen gyorsan nő a $\chi^2(p)$ értéke.

Az illesztések végeredményét mind a röntgen-, mind a neutronos mérésekre a 3. táblázat tartalmazza. A „tervezett” felíratú sorok a tervezett vastagságokat és az irodalmi adatokból számolt szóráshosszsűrűségeket tartalmazzák. A szóráshosszsűrűségek képzetes részének számolt értéke $\lambda = 4,6 \text{ \AA}$ hullámhosszú neutronok esetén nikkelle $3,12 \cdot 10^{-9} \text{ \AA}^2$, titánra $1,25 \cdot 10^{-9} \text{ \AA}^2$, réz $K\alpha$ röntgensugárzás esetén nikkelle $1,54 \cdot 10^{-6} \text{ \AA}^2$, titánra pedig $3,04 \cdot 10^{-6} \text{ \AA}^2$.

minta jele		$d_{Ni}[\text{\AA}]$	$d_{Ti}[\text{\AA}]$	$Re \rho_{Ni} [10^{-6} \text{\AA}^{-2}]$	$Re \rho_{Ti} [10^{-6} \text{\AA}^{-2}]$	$\sigma_{Ni}[\text{\AA}]$	$\sigma_{Ti}[\text{\AA}]$
	neutron						
P-a2	2 rétegpár	69.2	56.6	9.4	-1.9	9	6
P-a4	4 rétegpár	69.2	56.6	9.4	-1.9	9	6
P-a8	8 rétegpár	69.6	55.24	9.4	-1.9	9	6
	tervezett	66	59	9.4	-1.9		
	röntgen						
P-a2	2 rétegpár	69	56.4	61.5	33.5	8	5
P-a4	4 rétegpár	69.6	56.4	61.5	34.1	8	5
P-a8	8 rétegpár	69.4	55.2	61.5	34.1	9	6
	tervezett	66	59	64.1	33.5		
	neutron						
P-b2	2 rétegpár	98.3	67.7	9.4	-1.9	9	6
P-b4	4 rétegpár	96	66.5	9	-1.9	9	6
P-b8	8 rétegpár	96	66.5	9.4	-1.9	9	6
	tervezett	84	70	9.4	-1.9	9	6
	röntgen						
P-b2	2 rétegpár	96	66.5	61.5	34.05	9	6
P-b4	4 rétegpár	96	66.5	61.5	34.05	9	6
P-b8	8 rétegpár	96	66.5	61.5	34.05	9	6
	tervezett	84	70	64.1	33.5		
	neutron						
P-c2	2 rétegpár	119.6	87.8	9.4	-1.9	9	6
P-c4	4 rétegpár	115.7	81.6	9.4	-1.9	9	6
P-c8	8 rétegpár	118	89	9.4	-1.9	9	6
	tervezett	115	87	9.4	-1.9		
	röntgen						
P-c2	2 rétegpár	118.1	83.3	61.2	33.5	9	6
P-c4	4 rétegpár	115.7	81.6	64.1	33.5	9	6
P-c8	8 rétegpár	118	89	64.1	33.5	9	6
	tervezett	115	87	64.1	33.5		

3. táblázat: A különböző $[Ni(x)/Ti(y)]_N$ periodikus multirétegek neutron- és röntgenreflektivitás-mérése és illesztése során kapott eredmények

Látható, hogy csekély a különbség a röntgen és neutron mérések alapján kapott vastagságok között. A tervezett vastagságok és az illesztések eredménye jól megegyezik. Számottevő eltérés a tervektől a 84 Å nikkel és 70 Å titánt tartalmazó mintáknál volt, aholis a Ni réteget vastagabbnak, a Ti réteget pedig vékonyabbnak mértem a tervezettnél. A vastagságok hibája minden esetben 1,5 Å alatt van. A szóráshosszsűrűségek megegyeznek a várttal. Az irodalmi adatoknak⁵⁵ megfelelően a Ni(Mo) rétegek neutron szóráshosszsűrűsége nem tér el a tiszta nikkelétől, noha ennél a koncentrációnál 10%

körüli különbségek volnának várhatók, amit jól meg lehetne különböztetni, a szórás-hosszsűrűségek hibája ugyanis 5% körül van.

Az illesztés szerint a Ni rétegek tetején nagyobb elmosódottság (kb. 9 Å) figyelhető meg, mint a Ti rétegeken (kb. 6 Å). A különbség származhat akár eltérő diffúziós sebességből, akár különböző krisztallitnövekedésből, lehet krisztallitok behatolása a felette lévő rétegbe, vagy szemcsehatár menti diffúzió is.

A 17. ábrán látható, hogy az illesztés nagy q és kis rétegszám esetén kevésbé volt sikeres. Itt feltehetőleg a periódicitás feltételezése vezetett nagyobb hibához. Az egyes rétegekben bekövetkező $\phi_i = k_i d_i$ fázistolás nagy q mellett nagyobb mértékben tér el az átlagos vastagsággal számolt értéktől. Az átlagtól való eltérések pedig nagy rétegszám esetén jobban kiátlagolódnak, ezért vezet ott kisebb hibára a periódicitás feltételezése.

8 Rezonáns Diffúz Szórás periodikus Ni(Mo)-Ti rétegrendszerekben

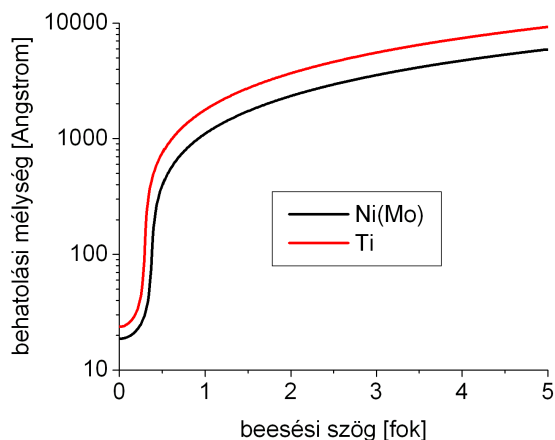
Ebben a fejezetben periodikus Ni(Mo)-Ti rétegszerkezeteken végzett offspekuláris röntgenszórási kísérleteim eredményét mutatom be. A vizsgált minták ugyanazok a Ni(Mo)-Ti szerkezetek, amelyeket jellemzéséről a 7. fejezetben számoltam be. Az azonos mintakészítési technika miatt az alább ismertetett korrelációkból következtetni lehet a szupertükrök hasonló tulajdonságaira is.

A rendelkezésre álló kísérleti berendezésekkel elvégezhető vizsgálatok elsősorban a felületi érdesség határfelületek közötti korrelációjának vizsgálatára voltak alkalmasak. Amikor rések biztosítják a nyaláb kollimációját, akkor a q szórési vektor felülettel párhuzamos összetevője nincs jól meghatározva, hanem $q_{||}$ -nak széles tartományára átlagolunk a mérés során (ennek hatásairól a 3.8. fejezetben írtam).

A detektor- és kibillentett-pásztázások (3.7. fejezet) során megfigyelhető Rezonáns Diffúz Szórás – RDS (3.5. fejezet) a határfelületek közötti másolódási korreláció egyértelmű jele. A periodikus Ni(Mo)-Ti rendszerek a szupertükröknél jóval egyszerűbbek, így a mért offspekuláris szórás jellege is könnyebben megérthető, és a határfelületi érdesség korrelációjának mértékére egyszerűbb következtetni.

Periodikus szerkezetek esetében a kibillentett-pásztázásoknál (hasonlóan a detektor-pásztázásokhoz) az RDS különböző rendjei a (29) feltétel által megszabott helyeken, különálló csúcsokként jelennek meg, hasonlóan a spekuláris reflektivitásgörbéken megjelenő Bragg-csúcsokhoz. A csúcsok szélességét általában az ismétlődő egységek száma határozza meg, hasonlóan ahhoz, ahogyan a kristallit-méret (a Scherrer-szabály szerint) határozza meg a diffrakciós csúcsok szélességét. A reflektometriában a spekuláris csúcsok esetén az ismétlődő egység a rétegpár, ezek számát a mintakészítésnél mi döntjük el. Az offspekuláris csúcsok a korrelált felületi érdesség következtében lépnek fel. Csak tökéletes replikáció esetén ismétlődik az érdesség ugyanannyiszor, mint ahány rétegpár van. Ha egyáltalán nem másolódik az érdesség, akkor RDS csúcsok sincsenek. Részleges replikáció esetén látunk RDS csúcsokat, de az érdesség ismétlődése nem terjed ki az egész szerkezetre. A rétegszámnál kisebb számú felület-"másolatából" eredő offspekuláris csúcs pedig szélesebbnek várható, mint tökélets replikáció esetén. A kiszélesedés megfigyeléséből következtethetünk a másolódási korrelációs hossz véges voltára és nagyságára.

A spekuláris és off-spekuláris csúcsok szélességének meghatározásánál fontos a jó szögfelbontás. A röntgenreflektométerek jellemző felbontása és fluxusa nagyobb, mint a neutron reflektométereké. A nagy fluxus lehetővé teszi, hogy a csúcsokat magasabb rendekig figyeljük meg, mint a rendelkezésemre álló neutronreflektométerekkel, amelyeken csak az RDS első és második rendjét tudtam megfigyelni. Ezekkel az előnyökkel szemben viszont hátrány a röntgensugárzás kisebb behatolási mélysége (18. ábra).



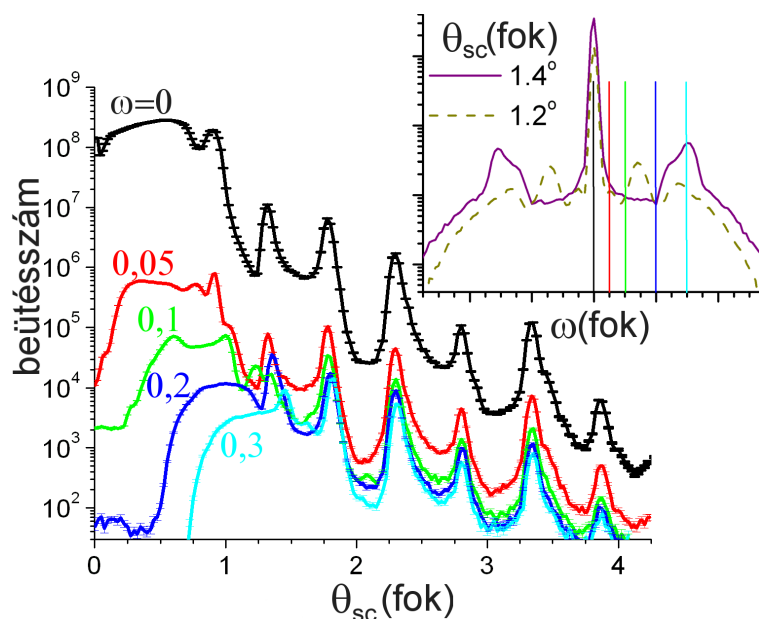
18. ábra: A Cu $K\alpha$ sugárzás behatolási mélysége Ni(Mo)-ban és Ti-ban

A vizsgált minták nyolc rétegpárból álltak, ezt a vastagságot még "átlátja" a használt röntgensugárzás. A kisebb rétegszámú mintákra (2 illetve 4 rétegpár, spekuláris vizsgálataikról a 7. fejezetben írok) nem végeztem kibillentett-pásztázásokat, mert kisebb rétegszám esetén gyengébb jel várható, továbbá az alábbiakban leírt méréseken alapuló becslés szerint nem várható esetükben megfigyelhető mértékű csúcscsiszéledés.

A röntgendiffraktométer (részletes leírása a 5.4. fejezetben) kb. 0,01 fokos szögfelbontása a megfigyelt csúcshélességekben csak elhanyagolható mértékű szélesedést okozhatott.

8.1 Kísérleti eredmények

A 19. ábrán láthatjuk a spekuláris és az offspekuláris kibillentett-pásztázások során mért görbéket egy nyolc rétegpárból (a 7.5 fejezet spekuláris illesztése alapján 97 Å Ni(Mo) és 67 Å Ti) álló mintára, amelynek jele a 2. táblázatban P-b8. A méréseket 0,05; 0,1; 0,2 és 0,3 fokos kibillentések (offset) mellett végeztük. A sarokban lévő kis ábra az ω -pásztázás eredményét mutatja 1,2 és 1,4 fok detektorszög mellett. Ezen feltüntettem a különböző kibillentésekhez tartozó pásztázások vonalával való metszés helyét. Világosan látszik, hogy a spekuláris csúcs már nem esik bele ezekbe, így ezek a görbék tisztán offspekulárisak. Az offspekuláris csúcsok spekulárisokhoz hasonló élessége arra utal, hogy a határfelületek érdességei erősen korreláltak.



19. ábra: A spekuláris szórás és az offspekuláris kibillentett-pásztázások eredményei a P-b8 ([Ni(97Å)/Ti(67Å)]₈) mintán. A kibillentés szögét az egyes görbék mellett tüntettem fel. Az x-tengelyen a szórási szög (detektorszög) látható. A mérést 1.54 Å hullámhosszú röntgensugárral végeztük.

Az ábra sarkában az ω -pásztázás eredménye látható 1.2 és 1.4° detektorszög mellett. A különböző alkalmazott kibillentések helyeit függőleges vonal jelzi.

A további két, a P-a8 ([Ni(69Å)/Ti(56Å)]₈) és P-c8 ([Ni(117Å)/Ti(85Å)]₈) mintákon mért görbék hasonlóak a 19. ábrán szereplőkhöz. Azokat nem ábrázoltam, de a kiértékelésüket elvégeztem és az alábbiakban leírom. A megfigyelt csúcsokra külön-külön Gauss-görbéket illesztettem, szélességüket (FWHM) így határoztam meg. A 4. táblázatban az egyes pásztázásokra kapott átlagos csúcsszélesség és ennek szórása, valamint a figyelembe vett csúcsok száma szerepel. A szomszédos csúcsok mért szögtávolságát választottam egységnek. A 4. táblázat utolsó oszlopában az egyes minták összes offspekuláris csúcsára kapott átlagos szélesség, ennek szórása és az összes figyelembe vett offspekuláris csúcs száma szerepel. Kihagytam azokat a csúcsokat, amelyeknek az intenzitása nagyon kicsi, vagy közel esnek valamelyik dinamikus Bragg-szerű csúcshoz (3.6. fejezet). Ilyen csúcs található például a 19. ábrán, a 0,2° kibillentéshez tartozó görbén.

Vannak olyan offspekuláris görbék, amelyekre az átlagos csúcsszélesség kisebb, mint a spekuláris, más esetekben pedig nagyobb. A csúcsszélességek szórása az egyes

pásztázásokon belül hasonló nagyságú, mint a különböző kibillentések esetén kapott átlagos csúcsszélességek különbsége. A 4. táblázat adatai azt mutatják, hogy az offspekuláris csúcsok mérhetően nem szélesebbek a spekulárisoknál.

4. táblázat: Az átlagos csúcsszélességek és azok szórása a különböző mintákra és kibillentések (fok) esetére. A csúcsszélességek és ezek szórása tekintetében a szög egysége az adott mintára mért átlagos csúcs távolság. A legalsó sor (N) az átlagolás során figyelembe vett csúcsok száma.

a) P-a8 minta ($[\text{Ni}(69\text{\AA})/\text{Ti}(56\text{\AA})]_8$), átlagos csúcs táv: 0.685°

kibillentés	0	0.05	0.1	0.2	0.3	off
szélesség	0.127	0.124	0.1	0.134	0.118	0.118
Szórás	0.027	0.023	0.021	0.025	0.012	0.024
N	6	5	4	3	4	16

b) P-b8 ($[\text{Ni}(97\text{\AA})/\text{Ti}(67\text{\AA})]_8$), átlagos csúcs táv: 0.513°

Kibillentés	0	0.05	0.1	0.2	0.3	off
szélesség	0.142	0.143	0.148	0.142	0.136	0.142
Szórás	0.009	0.007	0.006	0.007	0.013	0.009
N	6	6	4	5	4	19

c) P-c8 ($[\text{Ni}(117\text{\AA})/\text{Ti}(85\text{\AA})]_8$), átlagos csúcs táv: 0.412°

Kibillentés	0	0.05	0.1	0.2	0.3	off
szélesség	0.143	0.137	0.137	0.149	0.142	0.141
Szórás	0.013	0.017	0.021	0.017	0.017	0.018
N	8	8	8	7	6	29

Az átlagos mért spekuláris és offspekuláris csúcsszélesség a különböző mintákra a következő: P-a8: 0.127 és 0.118, P-b8: 0.142 és 0.142 valamint P-c8: 0.143 és 0.141. Felmerül a kérdés, hogy milyen pontossággal állíthatjuk, hogy nincs csúcskiszélesedés. A berendezés szögfelbontása ($0,01^\circ$) egyaránt növeli valamennyi csúcs szélességét, ezért nem ez adja a kiszélesedés korlátját. Adott mintára, adott kibillentés melletti pásztázásnál is jelentős szórása van a csúcsok szélességének, ami nagyobb a spekuláris és offspekuláris csúcsok átlagos szélességének különbségénél. A kapott csúcsszélességek bizonytalanságát a szórások adják. A három mintára a kiszélesedés rendre kisebb, mint P-a8: 0.027; P-b8: 0.009 és P-c8: 0.018. A másolódási korrelációs hossza aló becslést adhatunk a következő kinematikus számítás alapján.

8.2 A másolódási korrelációs hossz becslése az RDS kinematikus elmélete alapján

Az RDS csúcsok nagy szögeknél is megfigyelhetők, ahol a kinematikus közelítés érvényes, mert a többszörös visszaverődés és a törés elhanyagolható. A rétegpáron történő oda-vissza áthaladás fázisváltozása legyen φ , és az abszorpció miatti intenzitáscsökkenést a β szorzóval vegyük figyelembe.

A DWBA-ban (3.3. fejezet) az egyes határfelületek érdességét, illetve ennek korrelációját a $Q_{m,n}(q_j, q_k)$ kifejezések írják le, az egyes határfelületek korrelációja a Λ másolódási korrelációs hosszon cseng le. A Λ fogalmát használva és a 3.4. fejezetben leírt (28) közelítést alkalmazva

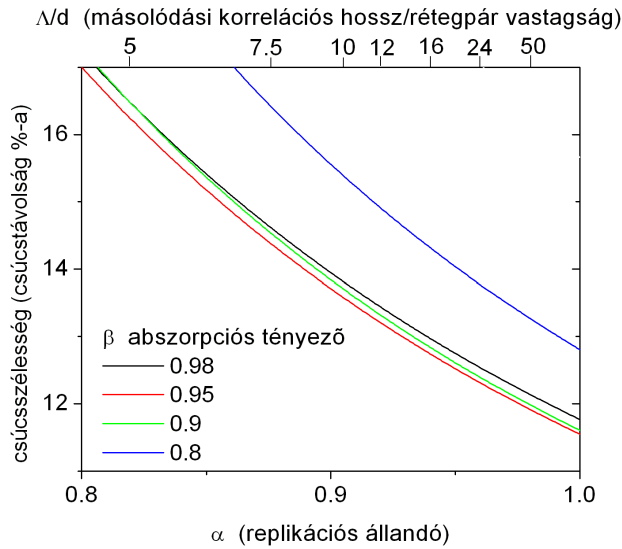
$$Q_{m,n}(q_j, q_k) = Q_0(q_j, q_k) \exp(-|z_j - z_k|/\Lambda) = Q_0 \alpha^{|j-k|} \quad (45)$$

A periodikus szerkezetben bevezetjük az $\alpha = \exp(-d/\Lambda)$ replikációs állandót (ahol d egy rétegpár vastagsága). Mivel a csúcsok keskenyek, egy csúcs szélességén belül az egy rétegpáron belüli korrelációkat leíró Q_0 mennyiség állandónak vehető. Egy csúcson belül hasonlóan elhanyagolható a β abszorpciós tényező szögfüggése is. Ezekkel a közelítésekkel kapott intenzitás a következő:

$$I = \sum_{j,k=1}^N \exp[i\varphi(j-k)] \alpha^{|k-j|} \beta^{j+k} = \sum_{l=0}^N 2\beta^2 \frac{\beta^{2(N-l)} - 1}{\beta^2 - 1} \cos(l\varphi) (\alpha\beta)^l \quad (46)$$

Itt N a rétegpárok száma, esetünkben nyolc. A $\varphi = 2\pi d(\sin \theta_{in} + \sin \theta_{out})/\lambda$ fázis változása miatt a csúcs közepétől távolodva az intenzitás lecsökken.

A (46) kifejezés alapján az α replikációs állandó függvényében, a β abszorpciós tényező néhány értékére kiszámoltam a csúcsszélességet a 8 rétegpárból álló mintákra. A kapott félértékszélességeket a 20. ábrán mutatom be. A modell keretein belül, azaz állandó α és β mellett a csúcsszélesség a beesési szögtől független.



20. ábra: A csúcsok számított félértékszélességei a replikációs állandó függvényében, az abszorpciós tényező néhány értéke mellett a szomszédos csúcsok távolsága egységeiben. a (46) szerinti kinematikus közelítés keretei között.

A 20. ábrán látszik, hogy β nagysága nincs jelentős hatással a csúcstávolságra, amennyiben $\beta > 0.9$. A β értékét kiszámítva megállapítottam, hogy a vizsgált csúcsokra teljesül ez a feltétel. A spekuláris reflektivitás esetében a rétegpárok ismétlődnek, a replikáció tökéletesnek vehető, azaz $\alpha = 1.0$. A fenti számolás szerint ekkor a szélesség a csúcstávolság 12%-ával egyenlő. A mért átlagos csúcstávolság a P-a8 minta esetében ugyanennyi, viszont a P-b9 és P-c8 mintákra 14 %, tehát kissé nagyobb a számolt értéknél.

Ha a spekuláris és az offspekuláris kibillentett-pásztázások során mért csúcstávolságokat tekintjük, és figyelembe vesszük, hogy az esetleges kiszélesedés kisebb, mint a megfigyelt szórásuk, akkor a 20. ábra alapján alsó becslést adhatunk az α replikációs állandóra. Ennek értéke mintáinkra: P-a8: $\alpha_{min} = 0.88$; P-b8: $\alpha_{min} = 0.95$ és P-c8: $\alpha_{min} = 0.93$. A replikációs állandó (45) definíciója alapján a Λ másolódási korrelációs hossza adható alsó becslés a P-a8, P-b8 és P-c8 mintákra rendre $\Lambda_a > 1000$, $\Lambda_b > 3200$ és $\Lambda_c > 2800 \text{ \AA}$.

5. táblázat: A másolódási korrelációs hossz becslésénél vizsgált minták adatai. A spekuláris és offspekuláris csúcsok átlagos w_{spek} és w_{offsp} szélességét, valamint a szélességek Δw szórását a csúcstávolság egységében adom meg.

Minta jele	$d_{Ni}(\text{\AA})$	$d_{Ti}(\text{\AA})$	w_{spek}	w_{offsp}	Δw	α_{min}	$\Lambda_{min}[\text{\AA}]$
P-a8	66	59	0,127	0,118	0,027	0.88	1000
P-b8	84	70	0,142	0,142	0,009	0.95	3200
P-c8	115	87	0,143	0,141	0,018	0.93	2800

A legkisebb másolódási korrelációs hosszat a legkisebb rétegvastagságra kaptam, de mivel kevés mintát vizsgáltam és a becslés bizonytalansága jelentős, ezért a rétegvastagsággal való kapcsolatáról nem állíthatunk fel összefüggést, ez még további vizsgálatok tárgya lehet.

9 Rezonáns diffúz szórás Ni-Ti neutron szupertükrökön

Amint a 2.5. fejezetben megállapítottam, a rétegrendszerek határfelületének szerkezetéről a spekuláris mérések csak korlátozott mértékben adnak információt. Az alábbi offspekuláris neutronreflektometriai mérések alapján a vizsgált neutron szupertükrök Ni-Ti rétegszerkezetekben nagy másolódási korrelációs hosszra következtem. A detektor- és kibillentett-pásztázások (3.7. fejezet) során megfigyelhető rezonáns diffúz szórás – RDS (3.5. fejezet) az erős korreláció egyértelmű jele. A neutron szupertükrök szerkezete nem periodikus, a rétegvastagság lassan, fokozatosan változik a szokásos szupertükrökben, ezért a határfelület másolódása esetén nem különálló, éles csúcsokra, hanem szélesebb platókra lehet számítani.

Mások is foglalkoztak a neutron szupertükrök vizsgálatával offspekuláris szórás segítségével. A. Paul és szerzőtársai polarizáló Fe-Si neutron szupertükrök polarizált diffúz neutronsórását tanulmányozták⁷. Maruyama és csoportja a felületi érdekesség korrelációját és az offspekuláris szórást NiC-Ti szerkezetekben vizsgálta. Ez utóbbiak ionnyaláb-porlasztással (Ion Beam Sputtering) készült szupertükrök, sávszűrők és periodikus minták voltak⁵⁸.

Dolgozatom ezen részében Ni(Mo)-Ti szupertükrök rétegszerkezeteken végzett offspekuláris méréseim eredményét mutatom be, kiértékelem és értelmezem azokat. A

periodikus szerkezetekhez hasonlóan, az elvégezhető vizsgálatok itt is elsősorban a felületi érdességek másolódási korrelációjának vizsgálatára voltak alkalmasak.

A témával eddig foglalkozó munkákból teljességgel hiányzik a szupertükrök $\theta_{in}-\theta_{out}$ (vagy $q_{in}-q_{out}$) szórási térképének analízise. Munkám annyiban mondható úttörőnek, hogy meghatároztam, hogy adott szerkezetű tükör esetén a szórási térkép egyes pontjaiban az RDS melyik rendje és módja adhat szórt intenzitást, és hogy ez a tükör mely rétegeiből származhat.

A szupertükrök teljes rétegvastagsága több μm -nyi, súroló beesés esetén a röntgen csak a felső rétegeket látja, így az offspekuláris röntgenreflektometria a rendszer mélységi vizsgálatára csak korlátozottan alkalmas. A neutron nagy behatolási mélysége viszont lehetővé teszi, hogy a mélyen fekvő határfelületekről, ezek korrelációjáról információt kapjunk valódi szupertükrök esetében.

A neutron szupertükrök offspekuláris szórásának ismerete gyakorlati szempontból is fontos, mert az a felhasználás jelentős részét adó fókuszáló neutronvezetőt tartalmazó berendezésekben a fókuszpont körül a háttér nemkívánatos megnövekedésére vezet.

9.1 Kísérleti eredmények és DWBA illesztések

A vizsgált minták $m=2.5$; $m=3$ és $m=5$ szupertükrök, amelyek a Hayter-Mook algoritmus szerint készültek⁴³. A szokásos módszer szerint („normál szupertükör”) a leválasztás a legvékonyabb rétegekkel kezdődik, és a vastagság a hordozótól távolodva növekszik. A tükör tetején egy vastag Ni fedőréteg is van, hogy nagy legyen a reflektivitás a Ni kritikus szöge alatt is. A szupertükör reflektivitása a Ni kritikus szöge alatt közel 100%, fölötte pedig nagyjából lineárisan csökken a szupertükör $m \cdot \theta_c(Ni)$ határszögéig, a szupertükör szerkezet nagy reflektivitásának határáig, ahol meredek letöréssel egy-két százalékra esik. Abszorpció nélkül mindegy volna, hogy ezt a sorrendet alkalmazzuk, vagy megfordítjuk. A fordított szupertükör anyagában a neutronok nagy utat tesznek meg kis beesési szög esetén, amikor az alul lévő vastag rétegpárokról verődnek vissza. Ez az abszorpció megnövekedéséhez vezet, és a tükör teljes visszaverődési tartománya felett egy mélyedés jelenik meg a reflektivitásgörbén. Emiatt a gyakorlatban a fordított szerkezet nem felel meg szupertükör céljára. Méréseimben a minták többsége normál

szupertükrök volt, de két „fordított tükrön” is végeztem méréseket, hogy ellenőrizzem a tükrökről offspekulárisan tükröződő neutronok szórási eloszlására vonatkozó elképzeléseimet.

A szupertükrök minőségét, neutroptikai használhatóságát jól jellemzi a közvetlenül a letörésüknél mérhető R_c reflektivitásuk. Az érdekesség jelentősen befolyásolja ennek értékét. A vizsgált minták m és R_c értékét, valamint a rétegsorrendet a 6. táblázatban tüntettem föl.

Minta	m	sorrend	R_c
S-1	2.5	normál	0.89
S-2	2.5	fordított	0.86(0.69)
S-3	3.0	normál	0.60
S-4	3.0	normál	0.71
S-5	3.0	normál	0.75
S-6	3.0	normál	0.80
S-7	3.0	normál	0.81
S-8	3.0	normál	0.88
S-9	5.0	fordított	0.7(0.3)
S-10	5.0	normál	0.41

6. táblázat: a vizsgált szupertükrök minták m értéke, R_c határreflektivitása és rétegsorrendje.

A szupertükrök minták is az 5.1. fejezetben leírt módon, magnetronporlasztással készültek. Anyaguk ugyanaz a Ni(Mo)-Ti, mint a 7. fejezetben vizsgált periodikus multirétegeké.

Az offspekuláris szórás mérésére az állandó, 4.28 Å hullámhosszon működő REF reflektométert használtam (6. fejezet). A beeső nyaláb kollimációját két 1 mm széles, egymástól 2 m-re lévő rés biztosította. A mintától 160 cm-re lévő helyzetérzékeny detektor érzékelte a szórt neutronokat. Az $m=5$ -ös tükrök esetén a GINA reflektométert használtam, hogy a nagyobb pásztázandó szögtartományt lefedhessem.

Ahogy a 3.9. fejezetben leírtam, a koherenciahossz erősen eltérő a nyalábbal párhuzamos (2800 és 18000 Å a beesési és szórási szögtől függően), és az arra merőlegesen irányban (kb. 25 Å).

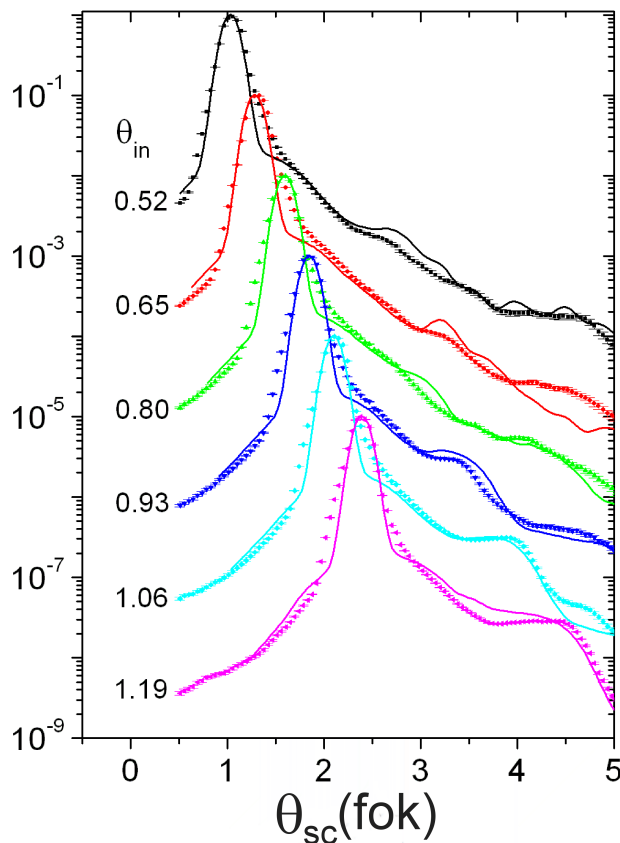
Adott beesési szögnél a helyzetérzékeny detektoron megfigyelhető szórási kép megfelel a pontdetektor mozgatásával kapható detektorpásztázásnak. Mivel a réssel párhuzamos irányban nincs kollimáció, ezért ebben az irányban a jelet összegeztem. Ennek eredményét a 21. és 22. ábrákon mutatom be, egy $m=3$ (a használt $\lambda=4,28$ Å hullámhosszra a határszög $\theta_{SM} = 1,28^\circ$) normál, illetve $m=2,5$ ($\theta_{SM} = 1,07^\circ$) fordított rétegrendű szupertükörré, az ábrákon feltüntetett beesési szögek mellett.

Az offspekuláris szórási kép jellegzetesen különbözik a normál és fordított rétegrendű minták esetén. A normál rétegrendű tükroknél a detektor-pásztázásokon egyetlen platót látunk a spekuláris csúcs nagyszögű oldalán. Ennek a platónak a vége a beesési szöggel változik, a spekuláris csúcs szögének kétszeresénél van.

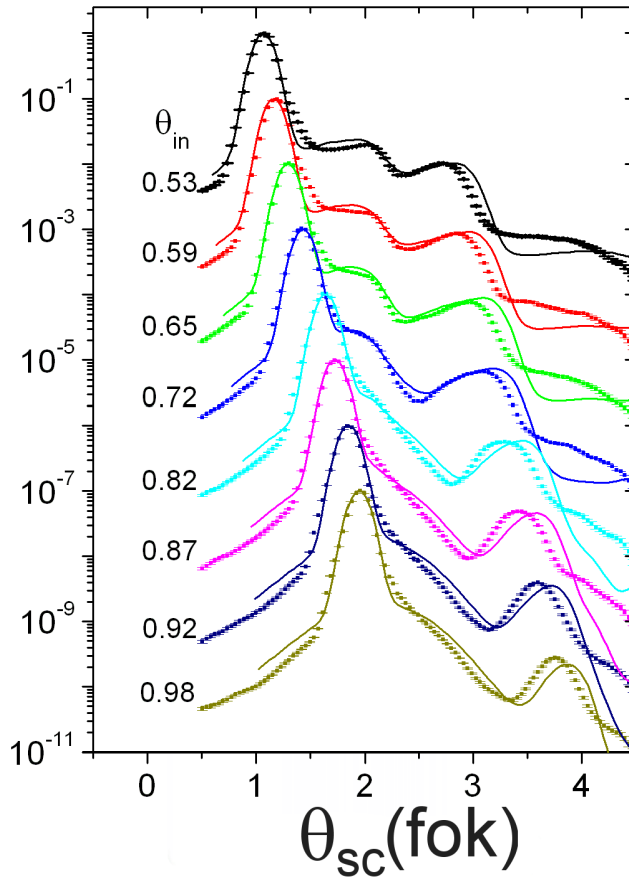
A fordított tükör szórási képében több részlet figyelhető meg. A spekuláris csúcsot a nagyobb szögek felé haladva egy plató követi, aminek letörési szöge nem függ a beesési szögtől, hanem állandó, a szupertükör határ szögének kétszeresénél van. Ahogy a beesési szög a tükör határszögéhez közelít, a letörést elfedi az erős spekuláris csúcs. Nagyobb detektorszögeknél ezt egy plató, vagy csúcs követi, amely egyre keskenyebb, csúcsszerűbb, ahogy a beesési szög a tükör határszögéhez közelít. Ennek a lemenő oldala megközelítőleg a beesési szög és a tükör határszöge összegének kétszeresénél, azaz $2(\theta_{in} + \theta_{SM})$ detektorszögnél van. A 6. táblázatban felsorolt valamennyi minta ezeket a jellegzetességeket mutatta, határszögének, és rétegsorrendjének megfelelően.

A vizsgált minták nagyszámú réteget tartalmaznak. Az $m=2.5$, és 3 szupertükrök 320 és 550 rétegből állnak. Ilyen nagy tagszámú többsrétegek reflektivitásának és diffúz szórásának számítására kevés szoftver áll rendelkezésre. Szerencsére a Sajti Szilárd (Wigner FK RMI Nukleáris Anyagtudományi Osztály) által fejlesztett FitSuite⁵⁹ (számos egyéb vékonyrétegekre végezhető mérés (spekuláris és offspekuláris, röntgen-, polarizálatlan és polarizált neutron reflektometria, konvencionális és szinkrotronos Mössbauer-spektroszkópia, magrezonáns előreszórás) szimulációján kívül) alkalmas erre. A program a DWBA-ban a perturbálatlan állapot hullámfüggvényét a mátrixmódszerrel számolja. A közös munka során kérésemre Sajti Szilárd a programot több ponton a jelen

projekt céljaira módosította és kiegészítette. A rétegek vastagságának a porlasztáshoz tervezett nominális értékeket, valamint a komponensek szóráshosszsűrűségének irodalmi értékeit vettem Ni(Mo)-re és Ti-ra.. Ezen kívül feltételeztem, hogy az érdeesség valamennyi határfelületre azonos.



21. ábra: Normál rétegrendű, $m=3$ szupertükör neutron detektor-pásztázásainak eredménye, különböző (az egyes görbéknél feltüntetett) beesési szögek és $\lambda=4.28 \text{ \AA}$ hullámhossz mellett. A detektált neutronok számát a szórési szög (vagy detektorszög) függvényében pontokkal, a DWBA-szimulációk eredményét pedig folytonos vonallal ábrázoltam. A statisztikus hibát jelöltem, de ez a pontok méretét nem, vagy alig haladja meg. A különböző beesési szögeknél mért szórási képeket függőlegesen eltoltam, hogy az ábra áttekinthetőbb legyen.



22. ábra: Fordított rétegrendű, $m=2.5$ szupertükör neutron detektor-pásztázásainak eredménye, (az egyes görbéknél feltüntetett) beesési szögek és $\lambda=4.28 \text{ \AA}$ hullámhossz mellett. A detektált neutronok számát a szórési szög (vagy detektorszög) függvényében pontokkal, a DWBA-szimulációk eredményét pedig folytonos vonalakkal ábrázoltam. A statisztikus hibát jelöltem, de ez a pontok méretét nem, vagy alig haladja meg. A különböző beesési szögek mellett kapott szórési képeket függőlegesen eltoltam, hogy az ábra áttekinthetőbb legyen.

A számolás során az érdeesség korrelációjának leírására a közös korrelációs hossz-modellt alkalmaztam (3.4. fejezet, (28) képlet). Ebben a határfelületek érdeességének korrelációját három paraméter, a ξ_{II} síkbeli korrelációs hossz, a Λ másolódási korrelációs hossz, továbbá a h Hurst-kitevő jellemzi. A véges felbontást az ideális szórési kép és a mért felbontás konvolúciójával vettem figyelembe. Meg kell jegyezni, hogy – mivel a spekulárisan és a diffúzan szórt intenzitást két külön elmélet állítja elő – a FitSuite software a spekuláris és offspekuláris intenzitás arányát szabadon hagyja, azt a felhasználónak kell megadnia. A rések a szórési síkra merőlegesen nem kollimálnak, amit

úgy vettem figyelembe, hogy a lehetséges q_y értékekre számolt szórási képeket felösszegeztem.

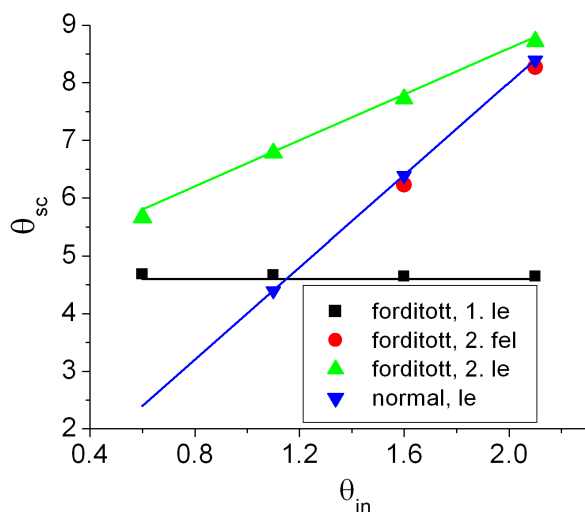
A mért és számolt görbék akkor egyeztek legjobban a két tükör esetén, ha $\sigma = 7 \text{ \AA}$, $h = 0.5$, $\xi_{II} = 450 \text{ \AA}$ és $\Lambda = 4000 \text{ \AA}$ paramétereket választottam. A DWBA-számolások eredményét a 21. (normál, $m=3$) és 22. (fordított, $m=2.5$) ábrák mérési görbéinél folytonos vonallal jelöltem. A korrelációs paraméterek aránylag széles tartományban változtathatók anélkül, hogy az illeszkedés jelentősen romlana (A „bizonytalansági tartománya” 2800 \AA és a végtelen közötti, a másik két paraméteré pedig a közölt érték kb. $\pm 15\%$ szélességű tartományára terjed ki).

Az előző (8.) fejezetben a röntgen RDS-csúcsok kiszélesedését nem lehetett megfigyelni, pontosabban csak egy felső korlátot lehetett rá megállapítani. Ennek alapján a Λ másolódási korrelációs hossza a következő alsó becslést adtam P-a8: $m2.4$, $\Lambda_a > 1000 \text{ \AA}$, P-b8: $m1.9$, $\Lambda_b > 3200 \text{ \AA}$ és P-c8: $m1.6$, $\Lambda_c > 2800 \text{ \AA}$ a periodikus mintákra (ahol az m -et követő szám a periodikus szerkezetek elsőrendű neutronreflexiók Bragg-csúcsának szögét jelöli, ϑ_{Ni} -egységekben). A szupertükrökre kapott eredmény is lényegében alsó becslés, összességében a kétféle rétegrendszerre kétféle úton kapott eredmény nem tér el jelentősen egymástól, inkább megerősítik egymást.

Ha tekintetbe vesszük a modellezett rendszer bonyolultságát, a mért és számolt görbék egyezése jónak mondható. A számítás pontosan visszaadja a normál és fordított szerkezetekre kapott szórásoképek eltérő jellegét. A platók intenzitásaránya, és a letörési szögek is megfelelnek a méréseknek. A fordított tükör platót követő csúcsának intenzitását, a csúcs keskenyedését a nagyobb beesési szögeknél visszaadja a számolás. A platót követő csúcs mért és számolt helye egyedül a fordított tükör esetében tér el valamelyest egymástól. Ez az eltolódás szisztematikus, a számolt helyek a nagyobb szögek felé tolódnak el a mértekhez képest. Ennek az eltérésnek egyik lehetséges oka az általunk használt egyszerű modell korlátozott érvényessége. A közös korrelációs hossz modell azon alapszik, hogy az érdekesség minden térbeli hullámhosszú összetevője ugyanolyan mértékben másolódik, ami nem feltétlenül igaz⁶⁰. Az is kérdéses, hogy a határfelületek közötti korrelációs hossz csakugyan független-e a rétegvastagságtól.

A fenti számolásban az összes határfelület érdességét azonosnak vettem. Valójában a Ni Ti-ban és a Ti Ni-ben való eltérő diffúziós együtthatója, a felületre érkezett Ni és Ti atomok eltérő felületi mozgékonyasága, a Ni-Ti és Ti-Ni határfelületek eltérő elmosódottságára vezethetnek. Egyes réteg-növekedési modellek^{5,6} és a vékonyrétegek szerkezeti zónamodelljén alapuló megfontolások⁶¹ szerint az érdesség függ a rétegvastagságtól is. Továbbá a rétegek egymásra épülnek rá, az alsó rétegek érdessége hozzáadódhat a réteg lerakódásánál létrejövő saját érdességhez, így növekvő, kumulatív érdesség jelenhet meg. Ezért megpróbálkoztam aszimmetrikus, a felső rétegek felé haladva növekvő és csökkenő érdességgel történő DWBA-számítással is. Az említett RDS csúcs helyzetét a számolás visszaadta, ha feltételeztem, hogy a σ_j érdesség csökkenő jelleget mutat, 20 Å a hordozón és 4 Å a legfelső határréteg esetében. Viszont ez a modell meglehetősen valószínűtlen az érdesség rétegrendszerében való fejlődésével foglalkozó irodalom alapján⁶². Feltehető, hogy a rétegvastagság függvényében változó másolódási korrelációs hossz alkalmazása is megszüntetné ezt a szisztematikus eltérést. Ez a modell valószínűbb, de a FitSuite jelenlegi változatában ilyen számolásra nincs mód. Továbbá kérdéses, hogy a korlátos felbontású és mennyiségű mért adatra való illesztésnél értelmes-e olyan modellek használata, amelyekben sok illesztési paramétert változtathatunk. Ennek akkor lehet jogosultága, ha a több információt nyújtó GISANS mérésekkel, valamint más eredményekkel (TEM, periodikus rendszerek spekuláris és offspekuláris vizsgálatával meghatározott érdességek, korrelációk, ezek mélységfüggése, stb.) vethetnénk össze.

Az $m=5$ szupertükröket a REF-nél nagyobb mérési szögtartományt átfogó és kissé jobb felbontású GINA reflektométeren mértem. Sajnos ezekre a tükrökre a DWBA számolást a rétegek nagy száma (4100) miatt a FitSuite programban fellépő numerikus instabilitások következtében nem lehetett elvégezni. Ennél a tükörnél a nagyobb szögeknek köszönhetően jobban látszik, hogy a különféle platók letörési szögei (szórási szög, θ_{sc}) a beesési szög lineáris függvényei (23. ábra).



23. ábra: $m=5$ -ös szupertükrökön megfigyelt platók felfutási és lefutási szögei (GINA neutronreflektométer, $\lambda = 4.6 \text{ \AA}$). A fordított rétegrendű tükör első platójának van lefutási éle (az ábrán „fordított, 1. le”), és második platójának, vagy csúcsának fel és lefutó éle („fordított, 2. fel” és „fordított, 2. le”). A normál rétegrendű tükrökre csak egy plató van, egy lefutó éllel („normál, le”). Az ábrába berajzolt vonalak ezen szögeknek a szövegben leírt módon megadott helyeit mutatják (rendre: $2\theta_{SM}, 4\theta_{in}, 2\theta_{SM} + 2\theta_{in}, 4\theta_{in}$).

9.2 Szupertükrök rezonáns diffúz szórásának értelmezése

Amint az előző rész végén láttuk, a szupertükrök esetén megfigyelt RDS platók alsó és felső határszögei a beesési szög elsőfokú függvényei, amelyek a tükör határszögétől és rétegrendjétől függenek. A megfigyelt lineáris összefüggés valamiféle egyszerű geometriai jellegű okra utal. A geometriai viszonyokat átgondolva rendszereztem a megfigyelt és DWBA közelítéssel számolható diffúz szórási platókat, és megállapítottam, hogy az RDS különböző rendjei és módjai a szórási képen mikor figyelhetők meg, és mikor nem. Az alábbiakban megmutatom, hogy a tapasztalt szórási képek a lassan változó rétegvastagságú szupertükrokn fellépő rezonáns diffúz szórás következményei.

9.2.1 Az RDS különböző módjai és rendjei periodikus rétegrendszerben

Mielőtt a szupertükrök esetével foglalkoznánk, célszerű egy pillanatra visszatérni az egyszerű periodikus rétegrendszerben bekövetkező RDS esetéhez. . Először is szükséges,

hogy valamilyen mértékben másolódjon az egyes rétegek felületi érdessége. A szokásos értelemben vett RDS-t akkor figyelhetjük meg, ha a θ_{in} beesési és θ_{out} visszaverődési szögekkel a (29) feltétel, nevezetesen a $\frac{2\pi}{\lambda}d(\sin \theta_{in} + \sin \theta_{out}) = 2n\pi$ teljesül. Ekkor két egymást követő rétegpárról diffúzan szóródó hullámok fázisa azonos, erősítik egymást. Itt n egész szám, és az RDS rendjének nevezzük. Mivel a szögek kicsik, ezt a feltételt a következő formában is írhatjuk:

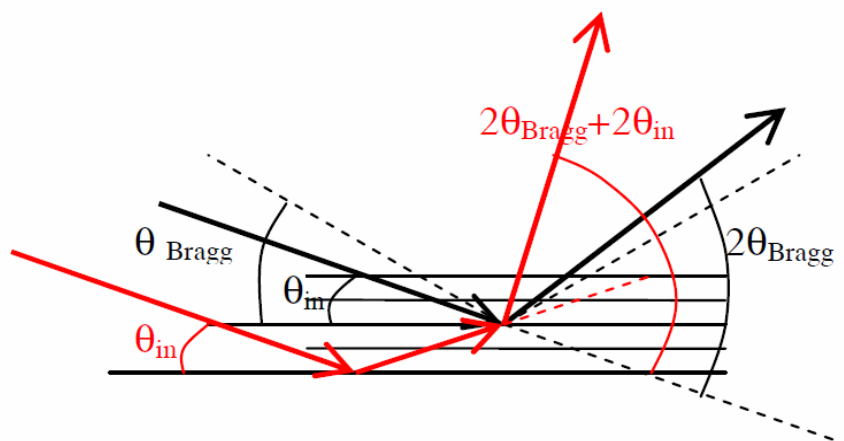
$$\theta_{in} + \theta_{out} = 2n\theta_{Br} \quad (47)$$

ahol θ_{Br} a rétegszerkezet és hullámhossz által megszabott Bragg-szög. A minta vákuumtól eltérő törésmutatója miatt egyrészt csak a kritikus szögnél nagyobb beesési és szórási szög esetén figyelhető meg RDS, továbbá az RDS adott rendjét ábrázoló vonal a kritikus szöghöz közeledve a törés miatt eltér a (47) képlettel meghatározott egyenes vonaltól. Az első rend, $n=1$ esetén a (47) egyenlettel leírt szórási folyamatot fekete vonallal szemléltetem a 24. ábrán. A 25. a) ábra $\theta_{in} - \theta_{out}$ szórási térképén szintén fekete vonalakkal jelölöm az RDS e módjának különféle rendjeit. Mivel a beeső (incident) nyaláb szóródik az érdességen, ezért ennek első rendjét RDS-i1-gyel, n -edik rendjét pedig RDS-in-nel jelölöm.

Ha gondolatban a hordozó felől világítanám meg a mintát, akkor is szóródnának a neutronok a laterális inhomogenitásokon, és az egymást követő határfelületekről érkező hullámok interferálnának egymással. A valóságban nem csak a mintára érkező beeső hullám van jelen, hanem a visszavert is, aminek intenzitása a szerkezettől és a beesési szögtől függ. Periodikus mintáknál ez a kritikus szög közelében, vagy Bragg-helyzetben erős. A később vizsgálandó szupertükrök esetében szintén erős a visszavert nyaláb, ezért nem hanyagolhatjuk el ott sem.

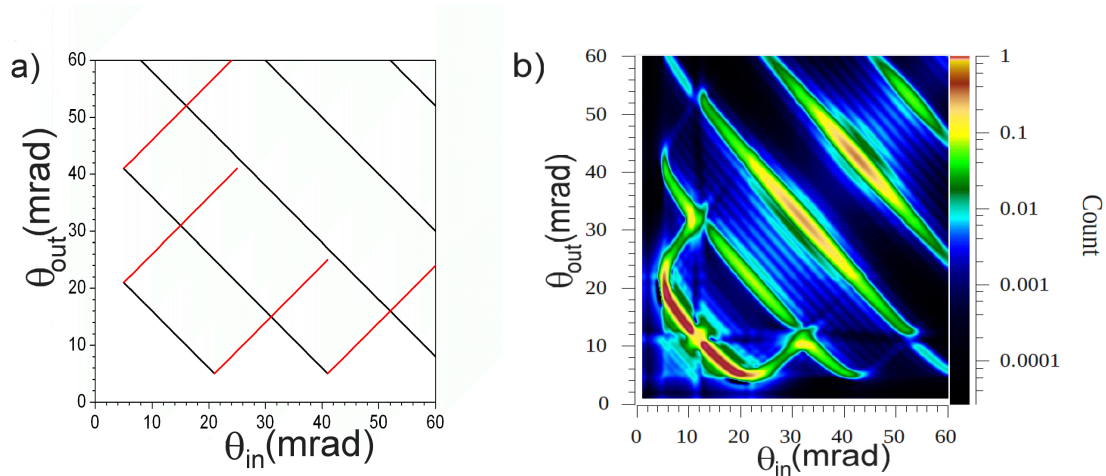
Vizsgáljuk meg, milyen szórási szögeknél figyelhetjük meg a visszavert nyalábon bekövetkező RDS-t! A beeső nyaláb iránya a spekuláris visszaverődés során $2\theta_{in}$ szöggel változik. Majd ez a nyaláb a diffúz szórás miatt további $2n\theta_{Br}$ szöggel térül el. Összesen tehát $2\theta_{in} + 2n\theta_{Br}$ az irány változása, így

$$\theta_{in} + \theta_{out} = 2\theta_{in} + 2n\theta_{Br} \quad (48)$$



24. ábra: A beeső nyalábon bekövetkező (RDS-i1, fekete nyíl), és a spekulárisan visszavert nyalábon bekövetkező (RDS-r1, piros nyíl) elsőrendű RDS folyamat periodikus szerkezet esetén. Az RDS-i1 esetében a bejövő nyaláb iránya az elsőrendű szórás miatt $2\theta_{Br}$ -gel változik, az RDS-r1-nél a spekuláris reflexió és a diffúz szórás miatt összesen $2\theta_{in} + 2\theta_{Br}$ szöggel változik.

Természetesen a törés ebben az esetben is módosítja a szögeket, ha a beesési vagy visszaverődési szög a kritikus szög közelében van. Az első rend, $n=1$ esetén ezt a már spekulárisan visszavert nyalábon bekövetkező folyamatot piros vonallal szemléltetem a 24. ábrán. A 25. a) $\theta_{in} - \theta_{out}$ szórási térképen is piros vonalakkal jelölöm az RDS e módjának különféle rendjeit. Mivel a visszavert (reflected) nyaláb szóródik az érdekesen, ezért ennek első rendjét RDS-r1-gyel, n -edik rendjét pedig RDS-rn-nel jelölöm.



25. ábra: Periodikus szerkezet diffúz szórása. a) Az RDS-i (47) egyenlet, fekete) és RDS-r ((48) egyenlet, piros) vonalak kinematikus közelítésben számolt helye a θ_{in} – θ_{out} térképen. Az RDS vonalaknak azon szakaszait, ahol a beesési, vagy visszaverődési szög kisebb a kritikus szögnél, nem húztam meg. Az RDS-r vonalaknak pedig csak az elejét rajzoltam be, ahol várható még szóródás. b) DWBA módszerrel számolt diffúz szórási intenzitás. Látható az RDS vonal elhajlása a kritikus szög (5 mrad) közelében, és a vonal visszahajlása az első rendben.

A DWBA módszert alkalmazva megjelenik az RDS mindkét fajtája, az RDS-i és RDS-r is, mert a perturbálatlan állapot az érdeesség nélküli esetben számolt hullámfüggvény, amiben egyaránt szerepelnek a rétegben befelé és kifelé haladó hullámok.

A 25. b) ábra DWBA-val számított θ_{in} – θ_{out} térképén látható, a végén visszahajló elsőrendű RDS vonal közönséges RDS-ként (a fent bevezetett jelölés szerint RDS-i) értelmezhetetlen. Ugyanis a térképen az RDS vonalnak azok a pontok felelnek meg, amelyekre egy rétegpáron keresztülhaladva a kifelé és befelé út során történő fázisváltozások összege adott állandó, $2n\pi$. A rétegpáron átmenő hullám fázisváltozása a beesési szög szigorúan monoton növekvő függvénye. A visszahajlásnál ellenben vannak olyan detektorszögek, amelyeknél az RDS vonal két különböző beesési szögön is átmegy, vagyis a fázis két különböző beesési szögnél egyforma, ami ellentétes a függvény monotonitásával. Eszerint a DWBA számolással kapott térképet pusztán a megszokott módon értelmezett RDS (azaz a beeső nyaláb szóródik az érdelességen, jelölésben RDS-i) alapján nem lehet következetesen értelmezni, megjelenik rajta az RDS-r is.

9.2.2 Az RDS különböző módjai és rendjei szupertükrökben

A szupertükrök esete jóval összetettebb. Ezekben a rétegvastagság nem állandó, de kellően lassan változik ahhoz, hogy a (29) feltétel egyszerre sok detektorszögre teljesüljön, és elkülönült, éles Bragg-csúcsok helyett szélesebb platókat figyelhessünk meg. A periodikus esetet továbbgondolva, a következőkben megvizsgálom, hogy az RDS-i és RDS-r különböző rendjei miként jelennek meg az normál és fordított rétegrendű szupertükrök esetén. Normál rétegrend esetén a hordozóra kerül a legvékonyabb rétegpár (amelyhez a legnagyobb Bragg-szög tartozik), és ezt követik az egyre vastagabb (kisebb Bragg-szögű) rétegpárok. A legvastagabb rétegpárok Bragg-szöge kevéssel a θ_{Ni} kritikus szöge fölött van. A θ_{Ni} kritikus szögénél kisebb beesési szögeknél a fedő Ni rétegről teljes visszaverődés következik be.

Ettől a megszokott rendtől eltérő módon, fordított rétegsorrenddel is készültek tükrök abból a célból, hogy ellenőrizsem a megfigyelt diffúz szórásra adott értelmezésemet, amit a következőkben fejtek ki.

Ha a felületi érdesség másolódik az egyes rétegek között, akkor a RDS bekövetkezhet akár a beeső, akár a mélyebben fekvő rétegekről visszaverődő nyalábon. Azt, hogy valamilyen szögtartományban megfigyelhetjük a diffúzan szóródó neutronokat, vagy sem, a következő szabályok alapján határozhatjuk meg. Az első szabály (Sz1) kijelöli, hogy mely rétegek vannak megvilágítva, a második (Sz2) megadja, hogy az RDS adott fajtája és rendje ezekből a rétegekből mely szög alatt lép ki, és a harmadik (Sz3), hogy a rétegekből mely szög alatt távozzhat a nyaláb. Az RDS egyes rendjeinek megfelelő tartományok helyét a $\theta_{in} - \theta_{out}$ térképeken ezek a szabályok adják meg. A szabályokat, és alkalmazásukat a különböző szupertükrök szerkezetekre, RDS típusokra és rendekre a jobb áttekinthetőség kedvéért táblázatba foglaltam (7. táblázat).

Érkezzen a neutronnyaláb a $\theta_{SM} = m\theta_{Ni}$ határszögű szupertükörre (θ_{Ni} a Ni kritikus szöge) θ_{in} beesési szög alatt!

Sz1): A szupertükrök rétegei a nyaláb által addig a mélységig vannak megvilágítva, ahol bekövetkezik a (közel) teljes visszaverődés. Ha $\theta_{in} < \theta_{Ni}$, akkor a nyaláb nem hatol be a rétegrendszer mélyébe. $\theta_{Ni} < \theta_{in} < \theta_{SM}$ esetén a nyaláb addig a rétegrendszerbe, amelyeknek θ_{in} a Bragg-szöge. A megvilágított rétegek Bragg-szögét

megadó egyenlőtlenségek a 7. táblázat első sorában találhatók a normál és fordított rétegrendű szupertükrökre. Ha a beesési szög nagyobb a tükör határszögénél, akkor a teljes rétegrendszer meg van világítva.

(Sz2) Ha a határfelületek érdekessége korrelált, a megvilágított rétegekből RDS indulhat ki. A megvilágított rétegekből potenciálisan távozó RDS által lefedett szögtartomány ((47) és (48) alapján számolva) a 7. táblázat második sorában van feltüntetve az RDS-i és RDS-r egyes rendjeire.

(Sz3) A θ_{Br} Bragg-szöggel jellemezhető rétegeket továbbiak fedik, amelyek nem minden szögre átlátszóak, így az (Sz2) szabály által megengedett potenciálisan távozó RDS nem feltétlenül juthat ki a rétegrendszerből.

A normál rétegrendű szupertükrök k -adik rétegpárját olyan rétegek fedik, amelyek összességükben felülatéresztő szűrőként működnek, ami csak a k -adik rétegpár Bragg-szögénél meredekebb kilépési szögekre átlátszó. A kisebb szögek esetén vagy valamelyik rétegpáron bekövetkező spekuláris Bragg-visszaverődés, vagy a fedő Ni átlátszatlansága miatt nem távozhat rezonáns diffúzan szórt nyaláb.

A fordított rétegrendű tükör k -adik rétegét pedig egy sávszűrő fedi, ami nem ereszt át a θ_{Ni} és θ_{SM} szögek között a neutronokat.

Az 7. táblázat harmadik sora adja meg, milyen szögek alatti neutronok juthatnak ki a rétegrendszer belsejéből.

A fenti (Sz1), (Sz2) és (Sz3) szabályokkal meghatározható, milyen szögtartományokban figyelhetünk meg RDS-t. A továbbiakban két esetet különböztetünk meg:

A) Mind a beesési, mind a visszaverődési szög a szupertükrök határszöge fölött van

Ekkor a tükör összes rétege meg van világítva, és a szórt nyaláb számára is átlátszó a rétegrendszer. A szupertükrök a határszöge fölött gyengén tükröz, ezért a visszavert nyalábon bekövetkező RDS-r elhanyagolhatóan kis intenzitású és csak RDS-i lép fel. Az RDS-t adó rétegek θ_{Br} Bragg szögeire $\theta_{Ni} < \theta_{Br} < \theta_{SM}$ teljesül, akár normál, akár fordított a rétegrend. Az RDS-i (47) szerint a $\theta_{in} + \theta_{out} = 2n \theta_{Br}$ esetén figyelhető meg. Tehát az egyes rendek ($n=1-3$ -ig) a következő szögtartományokban figyelhetőek meg:

RDS-i1: $2 \theta_{Ni} - \theta_{in} < \theta_{out} < 2 \theta_{SM} - \theta_{in}$

RDS-i2: $4 \theta_{Ni} - \theta_{in} < \theta_{out} < 4 \theta_{SM} - \theta_{in}$

RDS-i1: $6 \theta_{Ni} - \theta_{in} < \theta_{out} < 6 \theta_{SM} - \theta_{in}$

B) A beesési, vagy visszaverődési szög a szupertükör határszögénél kisebb

A 7. táblázatban az (Sz1-Sz3) szabályokat alkalmazom a $\theta_{in} < \theta_{SM}$ esetre. Ez nem megy az általánosság rovására, mert a $\theta_{out} < \theta_{SM}$ eset a $\theta_{in} - \theta_{out}$ térképnek a $\theta_{in} = \theta_{out}$ egyenesre való tükrözésével nyerhető.

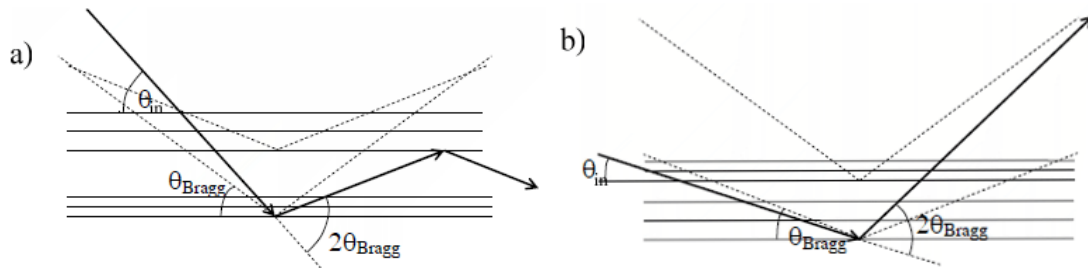
Rétegsorrend	Normál			Fordított		
RDS módja és rendje	RDS-i1	RDS-r1	RDS-i2	RDS-i1	RDS-r1	RDS-i2
A megvilágított rétegek Bragg szögei (Sz1)	$\theta_{Ni} < \theta_{Br} < \theta_{in}$			$\theta_{in} < \theta_{Br} < \theta_{SM}$		
A Bragg szögnek megfelelő potenciális visszaverődési szögek (Sz2)	$2\theta_{Br} - \theta_{in}$	$2\theta_{Br} + \theta_{in}$	$4\theta_{Br} - \theta_{in}$	$2\theta_{Br} - \theta_{in}$	$2\theta_{Br} + \theta_{in}$	$4\theta_{Br} - \theta_{in}$
A szórt neutronok kiléphetnek a szerkezetből, ha... (Sz3)	$\theta_{out} > \theta_{in}$			$(\theta_{out} < \theta_{in})^{**}$ or $\theta_{out} > \theta_{SM}$		
A megfigyelhető RDS-nek megfelelő Bragg szögek, $\theta_{Br\ obs}$	Soha	$\theta_{Ni} < \theta_{Br\ obs} < \theta_{in}$	$\max(\theta_{Ni}; \theta_{in}/2) < \theta_{Br\ obs} < \theta_{in}$	$(\theta_{SM} + \theta_{in})/2 < \theta_{Br\ obs} < \theta_{SM}$	$\max((\theta_{SM} - \theta_{in})/2; \theta_{in}) < \theta_{Br\ obs} < \theta_{SM}$	$\max((\theta_{SM} + \theta_{in})/4; \theta_{in}) < \theta_{Br\ obs} < \theta_{SM}$
A megfigyelhető RDS visszaverődési szögei (θ_{RDS})	Nincs	$2\theta_{Ni} + \theta_{in} < \theta_{RDS} < 3\theta_{in}$	$\max(4\theta_{Ni} - \theta_{in}; \theta_{in}) < \theta_{RDS} < 3\theta_{in}$	$\theta_{SM} < \theta_{RDS} < 2\theta_{SM} - \theta_{in}$	$\max(\theta_{SM}; 3\theta_{in}) < \theta_{RDS} < 2\theta_{SM} + \theta_{in}$	$\max(\theta_{SM}; 3\theta_{in}) < \theta_{RDS} < 4\theta_{SM} - \theta_{in}$

** Ellentétes a vizsgált eset $\theta_{in} < \theta_{out}$ kiindulási feltételével.

7. táblázat: Azon szögtartományok, amelyekben az RDS különféle rendjei és módjai megfigyelhetők, normál és fordított rétegrendű szupertükrökre, $\theta_{in} < \theta_{out}$ esetén.

Ha a fenti táblázatot megnézzük, láthatjuk, hogy híven tükrözi a normál és fordított szupertükrök diffúz szórásának azt a legszembevetőbb vonását, hogy a normál tükrőnél egy, míg a fordítottnál két szórási plató jelenik meg. Az RDS-r1 mindkét esetben megjelenik, de az RDS-i1 normál szupertükrő esetén nem figyelhető meg.

Az RDS-i1 rend hiányát értelmezi a következő, 26. ábra.



26. ábra: Az RDS-i1 szórt neutronok a normál szupertükrök esetében (a) ábra) a feljebb lévő rétegekről való visszaszórás miatt nem képesek elhagyni a mintát, megfigyelhetők viszont a fordított szupertükrőknél (b) ábra).

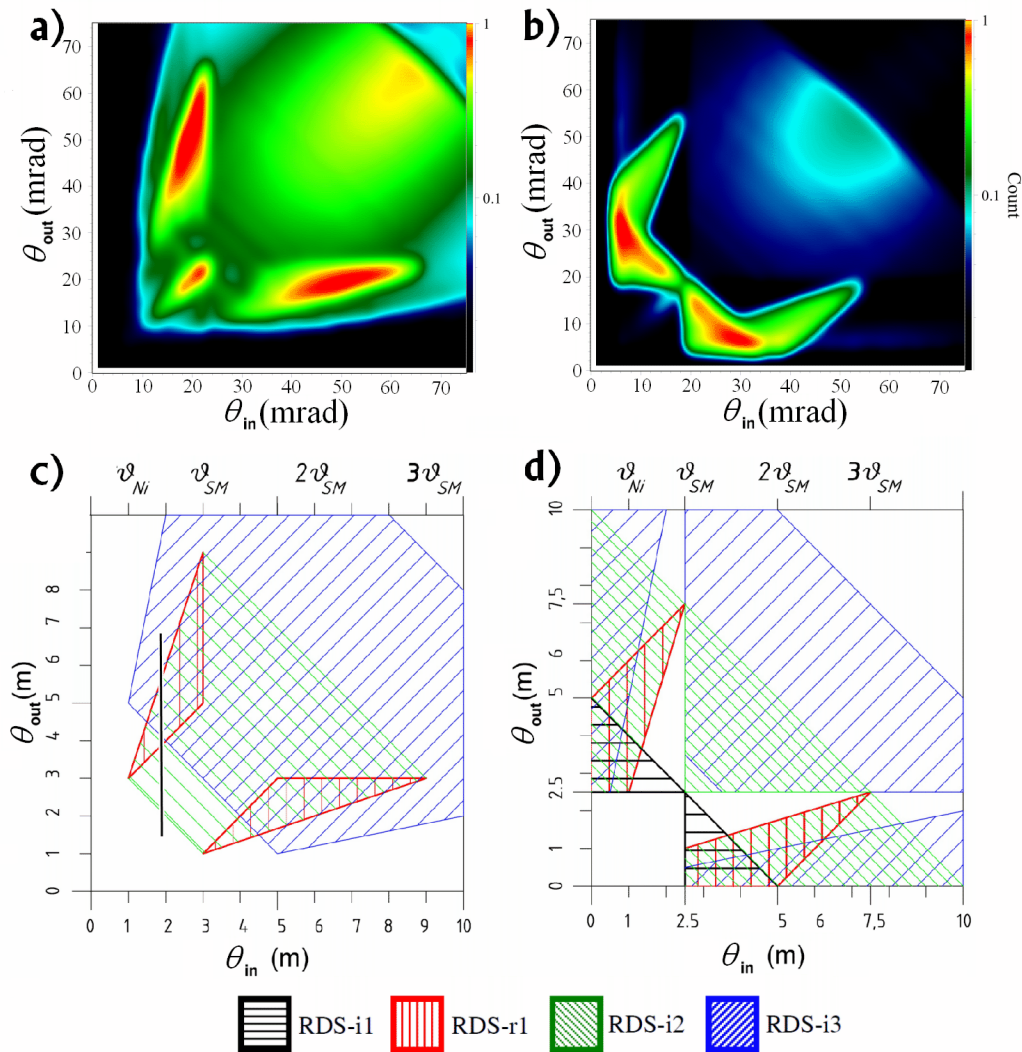
A szaggatott vonalak a vastagsághoz tartozó spekuláris Bragg szögeknek felelnek meg. A vastag nyíl a neutronnyaláb útját jelképezi.

A beeső (θ_{in} szög alatt) neutron az érdességen $2\theta_{Br}$ szög alatt szóródik erősen (RDS-i1), ez a Bragg szög a szóródás helyének megfelelő vastagságból adódik.

A normál rétegrendű szupertükrőben a felül elhelyezkedő rétegek között mindig van spekuláris Bragg helyzetben lévő réteg, ami visszaveri a neutronokat (vagy a kilépési szög a Ni kritikus szögénél laposabb lenne, amikor is a Ni fedőréteg veri vissza a neutronokat).

Fordított rétegrend esetén, amennyiben a szórt neutron a szupertükrő θ_{SM} határszögénél meredekebben távozik, képes áthatolni a felette lévő rétegeken, amelyek mindegyikének Bragg szöge kisebb θ_{SM} -nél, így a nyaláb kilép a rétegszerkezetből és detektálható.

Az alábbi, 27. c) (normál, $m=3$) és d) (fordított, $m=2.5$) ábrák $\theta_{in}-\theta_{out}$ térképein bejelöltem azokat a területeket, ahol a fenti megfontolások szerint meg lehet figyelni az RDS-i1, RDS-i2, RDS-i3 és RDS-r1 rendeket. A 27. a) és b) ábrán pedig ugyanezen normál és fordított tükrökre DWBA módszerrel számolt $\theta_{in}-\theta_{out}$ térképeket mutatom be. A rétegrendszereket, határszögüket, és azok érdességkorrelációját, valamint a mérési felbontást a számításhoz úgy választottam, hogy megegyezzenek a 21. és 22. ábrákon közöltekkel.



27. ábra: $\theta_{\text{in}}-\theta_{\text{out}}$ térképek normál rétegrendű, $m=3$ (a) és c)), valamint fordított, $m=2.5$ szupertükrök esetén (b) és d)). Az a) és b) ábrák a DWBA számítások eredményét mutatják (a rétegpáraméterek és a felbontás a jelen ábra szimulációiban és a 21. és 22. ábrákon közölt illesztésekben azonosak). A c) és d) ábrákat az 7. táblázatban összefoglalt megfontolás alapján készítettem. A c) ábrán látható függőleges fekete vonal szematikusan jelzi az egy detektor-pásztázás során megfigyelt metszetet.

Az RDS megjelenésére vonatkozó fenti megfontolások korlátot szabnak arra vonatkozólag, hogy hol várható erős diffúz szórás a szupertükrökről, a valóságos intenzitásviszonyokról azonban nem mondanak semmit. A 27. ábrán világosan látszik, hogy az elméleti megfontolás által megadott helyen megjelenik az RDS-r1 a normál szupertükrökre, és RDS-i1 és RDS-r1 a fordított szerkezetre. Az RDS-i3 határa is az elmélet által megszabott helyen jelenik meg, bár ott a $\theta_{\text{in}}=\theta_{\text{out}}$ egyenestől eltávolodva, az

intenzitás-csökkenés miatt végig nem figyelhetjük meg a vonalat. A DWBA számítás a hullámtörést is figyelembe veszi, ezért kapunk kissé görbe vonalakat, ellentétben a törést elhanyagoló rajzolt térképek egyeneseseivel.

A szupertükör határszöge alatt normál rétegsorrend mellett a $\theta_{\text{in}} = \theta_{\text{out}}$ egyenes mentén a DWBA számításban megjelenik egy erősen szóró sáv (27. a) ábra). Ezt kísérlettel nem lehet megfigyelni, mert az erős spekuláris csúcs elfedné. Ezt a szórást a fenti megfontolás keretei között a következő módon indoklom. Ilyenkor ugyanazon rétegekről történik maga az RDS-i1, mint amelyek blokkolnák a kijutást, emiatt csak részleges a blokkolás. A problémát perturbációként megközelítve pedig azt mondhatjuk, hogy az RDS-i1 kioltása nem teljes azokra a rétegekre, amelyekre a Bragg szög egyenlő a θ_{in} beesési szöggel, mert itt még éppen átfedik egymást a beeső és szórt állapot hullámfüggvénye, valamint a perturbáló potenciál.

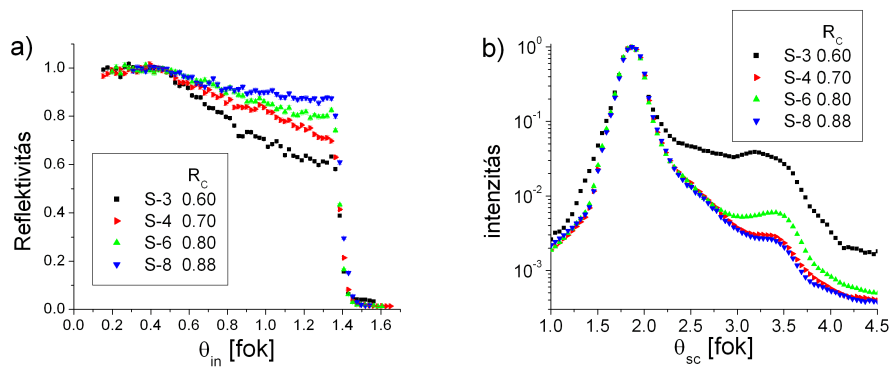
Sokkal jelentősebb, és a felületi érdesség jellegével kapcsolatos az, hogy a (27. c) és d)) elméleti megfontolásokkal ellentétben a DWBA számolással kapott (27. a) és b)) intenzitás térképről az RDS-i2 hiányzik. Ezt kioltási jelenségnek tartom. A számításokban mind a Ni, mind a Ti réteg felszínére 7 \AA felületi érdességet tételeztem fel. A kvázikinematikus elmélet szerint szimmetrikus érdesség esetén a másodrend (esetünkben az RDS-i2) kioltódik. Ha azonban a rétegpár két tagjának felületi érdessége különbözne, az RDS-i2 megjelenne. Erősen aszimmetrikus érdességet feltételezve a szupertükör számolt diffúz szórásában is megjelenik az RDS-i2. Ez a felismerés lehetőséget nyújthat a határrétegek elmosódottsága gyakori aszimmetriájának vizsgálatára. Periodikus rendszereknél a rétegpár két határfelületének eltérő érdessége hasonló hatást gyakorolhat a diffúz szórási képre, mint amit diffrakció esetén az elemi cellát alkotó atomok szórási hosszát figyelembe vevő szerkezeti tényezővel ("strukturfaktoral") írunk le (pl. CsCl-szerkezet és fcc rács).

9.3 A spekuláris és offspekuláris szórás intenzitása

Az offspekuláris szórás a minta laterális inhomogenitásából, jelen esetben a határfelületek érdességéből ered. A felületi érdesség az egyes határfelületek reflektivitásának csökkenéséhez vezet. Kézenfekvő az a feltételezés, hogy a nagyobb

érdesség erősebb offspekuláris és lecsökkent spekuláris reflektivitást okoz, és a jó minőségű, nagy reflektivitású tükör offspekuláris szórása gyenge. Ezen feltevés megvizsgálására azonos terv szerint készült (normál rétegrendű, $m=3$), de eltérő reflektivitású tükrök offspekuláris szórását hasonlítottam össze egymással. Az alábbi ábrán szereplő tükröknek a határszögüknél mért spekuláris reflektivitása (28. a) ábra) 0,6 és 0,88 között van. A 28. b) ábrán pedig mind a négy minta esetén azonos, $0,95^\circ$ beesési szögnél kapott detektor-pásztázási eredményeket láthatunk, vagyis a szórt intenzitást a θ_{sc} szórási szög függvényében.

Világosan megfigyelhető, hogy a mért offspekuláris szórás intenzitása nem követi egyértelműen a tükör spekuláris reflektivitásának változását (például $R_c=0,7$ és $0,8$ határreflektivitású mintákra kapott piros és zöld mérési pontok a 28. ábrán). A naív feltételezéssel ellentétben, nincs közvetlen összefüggés az offspekuláris szórás intenzitása, és a spekuláris reflektivitás között. Ennek az eredménynek több lehetséges magyarázata is van. A tükör reflektivitását a felületi érdességhez hasonlóan az ideális, tervezett rétegvastagságoktól való véletlenszerű eltérések is rontják⁴⁵. Továbbá az offspekulárisra ellentétben a spekuláris mérés eredményét csak a határfelület élettensége befolyásolja, az pedig, hogy ez mekkora laterális inhomogenitással jár, vagy a laterális inhomogenitások másolódási korrelációja milyen mértékű, a spekuláris reflektivitásra nincs hatással.



28. ábra: a) különböző minőségű $m=3$, normál rétegrendű szupertükrök spekuláris reflektivitása. b) $0,95^\circ$ beesési szögnél mért detektor-pásztázások. Nincs közvetlen összefüggés a tükrök határszögüknél mért (a jelmagyarázatban feltüntetett) spekuláris reflektivitása és a diffúz szórás intenzitása között. A mért beütésszámok statisztikus hibáját jelölöm, de az többnyire a pontokhoz hasonló méretű.

10 A neutrontükörök reflektivitásának érzékenysége a rétegrendszer hibáira

Az előző három fejezetben a Ni-Ti rétegrendszerek egyik lehetséges tökéletlenségének, nevezetesen a határfelületi elmosódottságnak a reflektivitásra és a diffúz szórásra gyakorolt hatásaival foglalkoztam periodikus rétegszerkezetekben és neutron szupertükörökben. Ebben a fejezetben más hibaforrások következményeit is megvizsgálom.

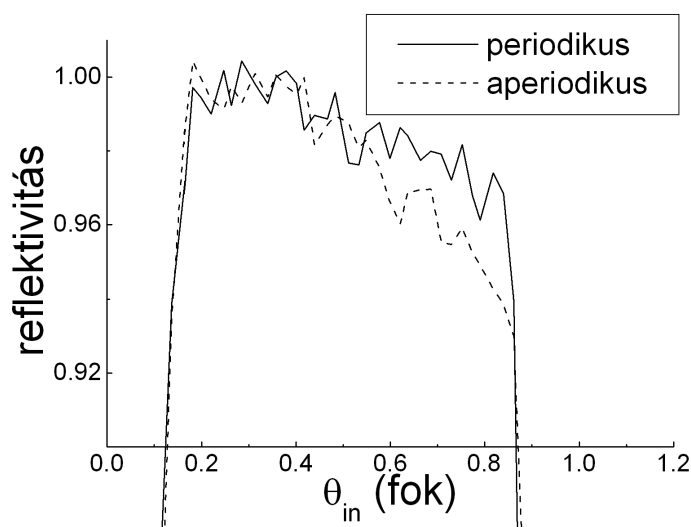
A neutrontükörök szerepe kulcsfontosságú a neutronnyalábok vezetésében és formálásában, ezért, mint minden műszaki alkalmazás esetén, felmerül a kérdés, hogy az elméleti, ideális eszköztől mennyire különböznek a gyakorlatban elkerülhetetlen tökéletlenségekkel rendelkező tükrök. Ezek egy része a gyártás során lép fel. Más részüknél a beépítése során vagy után, a használat során következik be a reflektivitás csökkenése. A sugárzás hatásával mások már foglalkoztak^{63,64,65}, én a felület elszennyeződésének következményeit vizsgáltam. A neutronvezetők nagy pontossággal vannak beállítva, és általában sok éven keresztül vannak használatban. A neutronvezetők belső felületének tisztítása nemcsak nehézkes, hanem gyakorlatilag lehetetlen. A neutronvezető- szakaszokban a szupertükörök ragasztva vannak, és sok esetben olyan helyen működnek, ahol a sugárveszély lehetetlenné teszi a munkát.

A fejezet első részében numerikus számításokkal tanulmányozom a Hayter-Mook, valamint a Carron-Ignatovich algoritmussal tervezett szupertükörök hibatűrését. Azt vizsgálom, hogy a rétegrendszer különböző tökéletlenségei (ú.m. az eltérések a tervezett rétegvastagságoktól, illetve a felület elmosódottsága) a különbözőképpen befolyásolja-e a kétféle szerkezetű szupertükör (spekuláris) reflektivitását. Mivel a Carron-Ignatovich tükör használatára nem találtam hivatkozást, ezért kísérletileg is összehasonlítottam a két módszerrel tervezett tükrök reflektivitását.

A fejezet második részében a szennyeződések hatását vizsgálom mind kísérletileg, mind Monte-Carlo szimuláció segítségével. A szupertükör felületére párologtatott különböző vastagságú olajrétegek mellett mértem a reflektivitást, és modelleztem a jelenséget

10.1 Hayter-Mook és Carron-Ignatovich algoritmussal tervezett tükrök kísérleti összehasonlítása

A minták a Mirrotron Kft. berendezésén magnetronporlasztással készültek (lásd 5.1. fejezet). Az $m=2$ szupertükrök szerkezetét a Hayter-Mook (aperiodikus, 4.4. fejezet) és a Carron-Ignatovich (szakaszonként periodikus, 4.3. fejezet) módszer szerint terveztem meg. A rétegszám mindkét esetben 110 volt, ami azonos az ekkora határszögű szupertükrök sorozatgyártásában alkalmazott rétegszámmal. A szakaszonként periodikus szerkezetből csak két minta készült, ellentétben az egyébként gyártott aperiodikus tükrökkel. A neutronreflektivitást a REF reflektométeren mértem ($\lambda=4,28 \text{ \AA}$). A 29. ábrán látható a mérés eredménye az egyik szakaszonként periodikus mintára és egy átlagos aperiodikus tükrökre. Látható, hogy a szakaszonként periodikus minta határreflektivitása nagyobb, de egy mintán szerzett eredményekből nem lehet messzemenő következtetéseket levonni.



29. ábra: egy tipikus aperiodikus és egy szakaszonként periodikus szupertükrő mérte reflektivitása a beesési szög függvényében, $\lambda=4,28 \text{ \AA}$ hullámhossz mellett. Mindkét minta 110 rétegből áll. A baloldalon látható meredeken felfutó él a véges minta és nyalábméret miatt jelenik meg.

10.2 Különböző szupertükrök reflektivitásának hibatűrése

A szupertükrő szerkezetek számítására szolgáló algoritmusok számos közelítést alkalmaznak (abszorpció, a Bragg-feltételt közelítőleg sem teljesítő rétegek hatásának

elhanyagolása, stb.). Így a számított reflektivitás természetesen nem éri el a tervezési algoritmusban megcélzott 1- ζ értéket. Ráadásul a valóságos, legyártott szupertükör óhatatlanul eltér a tervezett ideálistól (tökéletesen sík és ugrásszerű határ a rétegek között, a tervben szereplőkkel pontosan azonos rétegvastagságok, stb.). Ezeket a hibákat analitikusan nem, vagy csak nagy nehézségek árán lehet figyelembe venni. Viszont a Parratt-formalizmus (2.4. fejezet) alkalmas a hibás tükrök (véletlenszerű eltérések a tervezett vastagságoktól, felület elmosódottsága) reflektivitásának számolására is. A különféle hibák reflektivitásra gyakorolt hatását modellszámításokkal meghatároztam, és az eredményt összehasonlítottam a két tükrötervezési módszerre.

10.2.1 A vizsgált szupertükör-szerkezetek

A rétegszámot rögzítettem, az adott határszögű szupertükör sorozatgyártásánál használt értéket vettem minden esetben. A vizsgált szerkezetek kritikus szöge és rétegszáma a következő volt: $m=2$: 110, $m=2,6$: 320, $m=3$: 560 és $m=4$: 1600. Az algoritmusokban adott m mellett a ζ paramétert lehet változtatni és úgy megválasztani, hogy a kívánt rétegszámot kapjuk. Az egyes szerkezetekre a következő jelöléseket használok: AP: aperiodikus szupertükör, Hayter-Mook algoritmus szerint, PI: szakaszonként periodikus, Carron-Ignatovich algoritmus szerint, a (41) egyenlet közelítésmentes formáját használva, PII: szakaszonként periodikus, Carron-Ignatovich, a (41) egyenletben jelölt közelítést alkalmazva. Az ábrákon több helyütt nem ábrázoltam az $m=2,6$ -ra vonatkozó eredményeket, hogy elkerüljem a zsúfoltságot.

10.2.2 A reflektivitás jellemzése

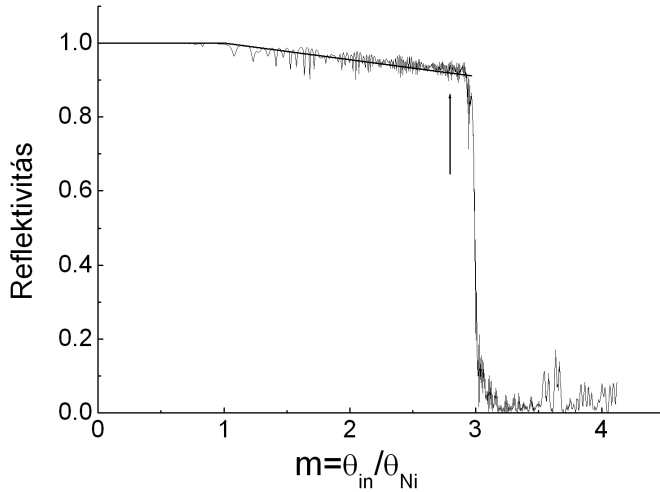
A szupertükrök számolt reflektivitásának (30. ábra) bonyolult finomszerkezete van, igen éles minimumokkal. Az oszcillációk megjelenése a rétegrendszer belső határfelületeiről visszavert neutronok interferenciájának következménye. A finom részletektől eltekintve a reflektivitás a Ni kritikus szögéig 100%, annál nagyobb szögekre pedig gyakorlatilag lineárisan csökken a szupertükör reflektivitásának letöréséig, θ_{SM} -ig. Mivel a rétegvastagságokat szisztematikus nem növeltem, vagy csökkentettem, nem változhatnak meg a hibák hatására a tükrök periodikus, vagy közelítőleg periodikus részeinek Bragg-

szögei, és így függetlenül a tanulmányozott hibáktól az egész tükörre jellemző határszög változatlan marad.

Az egyenes szakasz meredekségét viszont befolyásolják a vizsgált eltérések. Ezért a szupertükrök minőségét a „lejtés”-nek nevezett mennyiséggel jellemzem, nevezetesen azzal, hogy hány %-kal csökken a reflektivitásuk a lineáris szakasz egységnyi hosszúságú része alatt. Itt, mint a tükör m -értékének megadásakor, a θ_{Ni} kritikus szöge az egység. Ezért a lejtés ábráimon feltüntetett mértékegysége a %/m. Minél jobb a tükör minősége, annál kisebb a lejtés. A tükör akkor számít jó minőségűnek, ha a reflexió során kicsi a veszteség. A lejtést nem egyenes illesztésével határoztam meg, hanem az integrált reflektivitásból, úgy, hogy a közelítő R_{appr} és a számolt R_{calc} a $\theta = 0$ és θ_{SM} közötti integrálja azonos legyen.

$$\begin{aligned}
 R_{appr} &= 1, \text{ ha } \theta_{in} < \theta_{Ni} \text{ és} \\
 R_{appr} &= 1 - \frac{slope}{100} \frac{\theta - \theta_{Ni}}{\theta_{Ni}}, \text{ ha } \theta_{in} > \theta_{Ni}
 \end{aligned} \tag{49}$$

és teljesül: $\int_0^{\theta_{SM}} R_{calc}(\theta) d\theta = \int_0^{\theta_{SM}} R_{appr}(\theta) d\theta$.

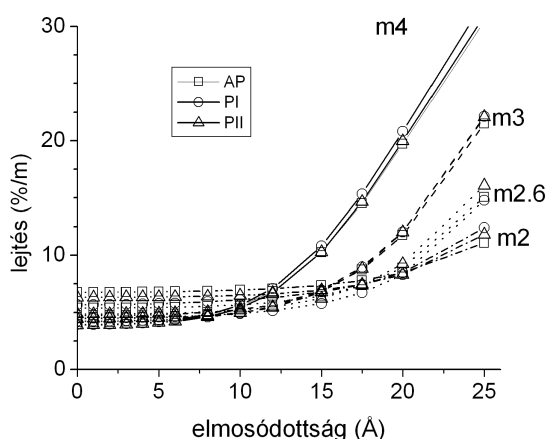


30. ábra: számolt reflektivitásgörbe és közelítése a beesési szög függvényében (amelynek egysége a θ_{Ni} kritikus szöge). A függőleges vonal a (49) integrál felső $\theta(lim)$ határát jelöli.

10.2.3 A határfelületek elmosódottságának hatása a szupertükrök spekuláris reflektivitására

A határfelületek elmosódottságát a Parratt-formulában az egyes határfelületek spekuláris reflektivitásának a Nevot-Croce szorzófaktorral (2.5. fejezet) való csökkentésével vehetjük figyelembe. A szorzófaktor $\exp(-\sigma^2 k_1 k_2)$, ahol k_1 és k_2 a hullámszám-vektor felületre merőleges komponense a határfelület két oldalán, σ pedig a határfelület elmosódottsága, akár érdesség, akár diffúzió okozza azt.

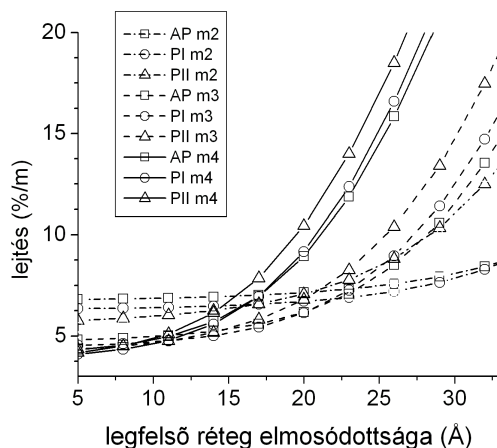
Először ugyanakkora érdességgel számoltam minden egyes határfelületnél. Noha ez kissé leegyszerűsíti a problémát, de a hatás jellegéről ad némi általános információt. A számolás eredménye a 31. ábrán látható.



31. ábra: a reflektivitás lejtése a határfelület elmosódottságának függvényében.

Szembetűnő, hogy 10 Å alatt az elmosódottság hatása csekély, 1,5 % alatt van, ami kb. az egyharmada annak a lejtésnek, amit a hibamentes, ideális rétegrendszerekre számoltam. Aránylag kis hatással van rá a tervezésben használt algoritmus. Nagyobb m esetén inkább megnő a lejtés, ugyanis a Nevot-Croce szorzófaktor hatása nagyobb szögeknél jelentősebb.

Valószerű az a feltevés, hogy a határfelület elmosódottsága az egymásra növesztett rétegeken egyre nagyobb lesz. Ezért megvizsgáltam azt az esetet, amikor a hordozó felületétől ($\sigma = 5$ Å) a legfelső rétegig egyenletesen növekszik az érdesség. A 32. ábrán látható a számítás eredménye. Az x tengely a legfelső réteg elmosódottságát mutatja.

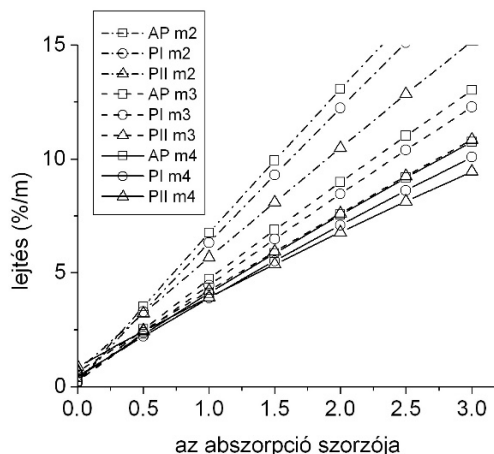


32. ábra: A reflektivitás lejtése legfelső réteg felületi elmosódottsága függvényében. A hordozó elmosódottsága 5 Å.

Az előző esethez hasonlóan itt is a nagy határszögű szupertükrök minősége romlik inkább. Ellenben a különféle tervezési algoritmusok eredménye között nagyobb a különbség, a PII recept a legérzékenyebb az érdesség megnövekedésére.

10.2.4 Az abszorpció hatása

A tükröket alkotó Ni és Ti rétegekben történő neutronabszorpció elkerülhetetlen, ezt csökkenteni nem tudjuk, de növekedése elképzelhető szennyeződés vagy adalékolás következtében. A 33. ábra x tengelyén az „abszorpció szorzója” felirat azt jelenti, hogy a számolásban hányszorosára növeltem a Ni és Ti szóráshosszsűrűségének képzetes részét a tiszta anyagokéhoz képest. Jól látszik, hogy a lejtés egyenesen arányos ezzel. Az elnyelésmentes anyag képzeletbeli esetében a lejtés jóval kisebb lenne, mint a valóságban.



33. ábra: A reflektivitásgörbék lejtése az abszorpció (a tiszta anyagéhoz viszonyított) szorzójának függvényében.

Az ábrán feltüntetett számított értékekre jól illeszkedő $lejtés = b \cdot (rel. abs.) + a$ egyeneseket illesztettem, amelyek az y -tengelyt az origó közelében metszik, tehát az a közel nulla. A szupertükrök az abszorpció nélküli, képzeletbeli esetben közel 100 %-os reflektivitást adnának. A b meredekségeket a 8. táblázat tartalmazza.

8. táblázat: A b meredekség illesztett értékei. A lejtés a relatív abszorpció lineáris függvénye a $b \cdot (rel. abs.) + a$ kifejezésnek megfelelően.

	illesztett b együttható
$m=2$	
AP	6.3
PI	5.9
PII	4.8
$m=2.6$	
AP	5.0
PI	4.5
PII	3.8

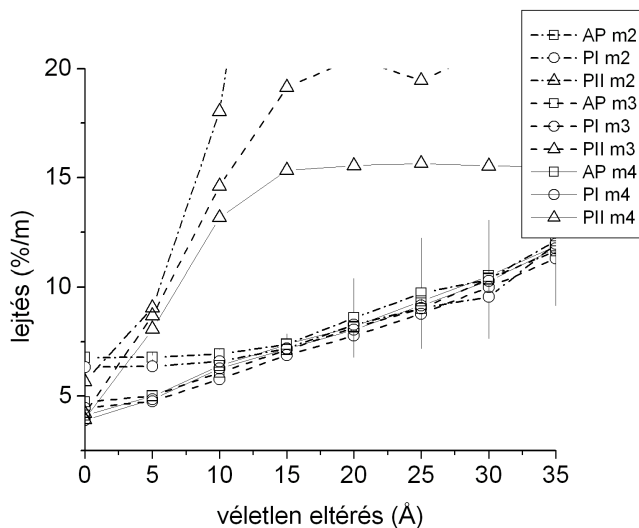
	illesztett b együttható
$m=3$	
AP	4.3
PI	4.0
PII	3.4
$m=4$	
AP	3.4
PI	3.2
PII	2.9

A 8. táblázatban szereplő b együtthatók az (a 33. ábrára illesztett egyenesek meredekségei) m növekedtével csökkennek. Az abszorpció növekedtével minden m -re az aperiodikus AP szerkezet romlik leggyorsabban, közepesen a szakaszosan periodikus PI, a legkevésbé pedig az egyszerű szakaszosan periodikus PII. Adott m -nél a teljes rétegrendszer-vastagságok különbségei csekélyek a lejtés változásaiban lévő eltérésekhez (20-30%) képest. A szupertükrökben többszörös visszaverődés történik, és az effektív

úthossz nagyobb lehet a Bragg-reflexió helyéig való oda-vissza útnál, és ezen eredmény szerint jelentősen függhet a tükör receptjétől. A lejtés nagyobb növekedése az anyagban megtett hosszabb útra utal, ami több visszaverődéssel jár a réteghatárokon. Ez az offspekuláris szórás növekedéséhez vezethet, ami talán megfigyelhető is lenne³⁸ a különféle recept szerint készült szupertükrökön végzett mérésekkel.

10.2.5 Véletlenszerű eltérések a rétegvastagságokban

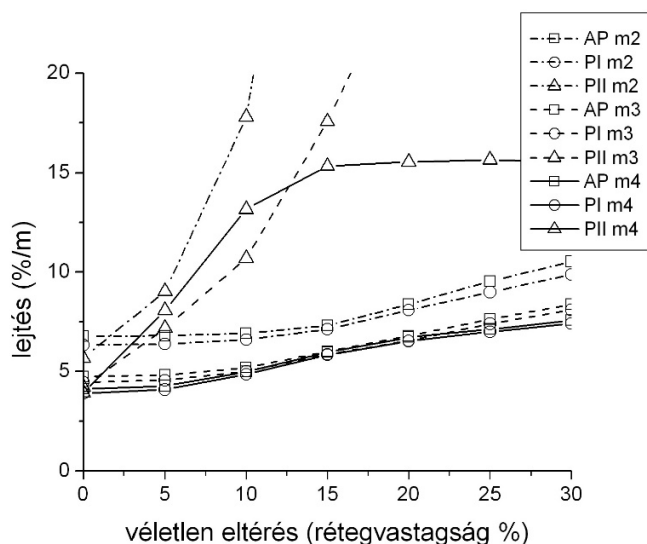
A vizsgált szerkezetek minden rétegének vastagságát megváltoztattam, a 34. ábra x tengelyén feltüntetett határnál kisebb véletlenszerű értékkel. Ezt minden egyes határ, szerkezet és m esetén sokszor elvégeztem, és meghatároztam a reflektivitásgörbék lejtésének az átlagát és a szórását. Az ábrán az átlag van feltüntetve minden esetben, a szórást csupán az $m=2$ aperiodikus tükrökre ábrázoltam.



34. ábra: A rétegvastagságok véletlenszerű eltéréseinek hatása a lejtésre. A rétegek vastagságát az x -tengelyen megadott korláton belül véletlenszerűen csökkentettem vagy növeltem. Az ábrán feltüntetett hiba az $m=2$ aperiodikus szerkezetre vonatkozik.

Meglepő, hogy az aperiodikus és a PI szakaszosan periodikus szerkezet még nagy véletlenszerű eltérések mellett is jól megtartják a határreflektivitást. Az ábrán látható, hogy a recepteken belüli vastagságlépéseket meghaladó, 15-20 Å -ös eltérések is csak 3% alatti növekedést okoznának a reflektivitás lejtésében. De ebből nem következtethetünk arra, hogy a használt recept nincs befolyással a számolási eredményekre. A PII aperiodikus szerkezet például nem viseli jól ezeket a hibákat.

Egy másik számítássorozatban a véletlenszerű változások határa nem ugyanaz volt minden rétegben, hanem mindegyikre az adott rétegvastagság meghatározott százaléka. Ennek eredménye a 35. ábrán látható, amely a 34. ábrához hasonló jellegű.



35. ábra: a rétegvastagságok véletlenszerű eltéréseinek hatása a lejtésre. Az egyes rétegek vastagságát az x -tengelyen feltüntetett százalékos eltérésen belül véletlenszerűen módosítottam.

A fenti számításokkal meghatároztam, hogy a vizsgált hibák (érdesség, abszorpció, véletlenszerű rétegvastagság-eltérések) milyen mértékben vezetnek a különféle algoritmusokkal tervezett szupertükrök minőségének romlásához. Megállapítottam, hogy az aperiodikus Hayter-Mook (AP), és a szakaszosan periodikus Carron-Ignatovich (PI) algoritmusokkal kapott szerkezetek hasonló hibatűrésűek, jól viselik a határfelület élettenséget, és a rétegvastagságok véletlenszerű megváltozását is. A tükrő anyagában elkerülhetetlenül bekövetkező abszorpciónak jelentős szerepe van a reflektivitás csökkenésében. Az abszorpció nagyobb hatással van az AP szerkezetek reflektivitáslejtésére (20-30%), ebből a tükrőben megtett nagyobb effektív útra következtethetünk.

Ha a gyártás során elkészített rétegeknek az ideálistól való tényleges eltérését részben (például határfelületi elmosódottságokat) meg tudnánk határozni, vagy valószerű feltevéseket tennénk rá, akkor érdemes lenne azokat figyelembe venni a szupertükrő-szerkezet tervezésénél.

10.3 Felületi olajréteg hatása a neutrontükörök reflektivitására

A neutron szupertükröket főként neutronvezetők építésére használják. Ezek hossza jellemzően több tíz méter, körülbelül 0,5-1 méter hosszú darabokból állanak, gyakori a kilométeres görbületi sugár, és nagy pontossággal állítják be őket. Mivel a levegőn a neutronok szóródhatnak, és 20 méter úton légköri nyomáson a nyalábintenzitás 50 %-a elvész, ezért a neutronvezetők belsejében légritkított teret hoznak létre. A neutronvezető a telepítés után akár több évtizedig üzemel változatlanul, ezért érdemes megvizsgálni, milyen hatások ronthatják le a neutronvezetési képességeket.

A neutronforrás közelében a legnagyobb veszély a sugárzási károsodás. Bórtartalmú üvegek esetén maga az üveganyag mállik szét^{63,64}, vagy a tükörréteg válik le. Végeztek kísérleteket, amelyek szerint a gamma-fűtés hatása is jelentős, ugyanis azonos besugárzott dózis mellett a hűtött minták kevésbé károsodtak.⁶⁵

Másik lehetséges probléma a vezető szennyeződése. Ennek forrása részben az általában használt rotációs légszivattyúk olaja, mely ugyan olajcsapdával nagyrészt megfogható, részben pedig a neutronvezető tömítési hibáin óhatatlanul beáramló levegőből kicsapódó szerves anyagok. A szennyezés főleg a hidrogénatomok nagy szórási hatáskeresztmetszete (80 barn) miatt okoz veszteséget.

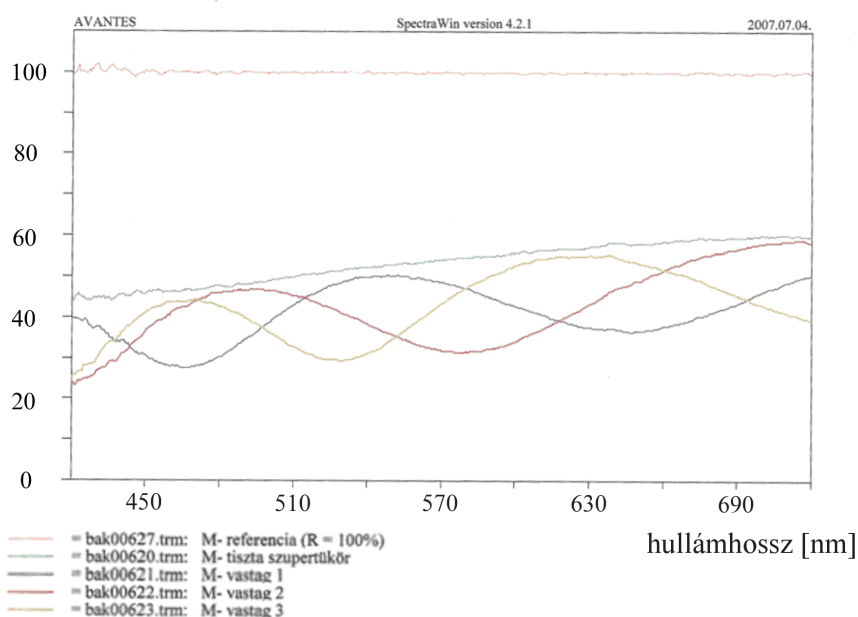
10.3.1 Tesztminták készítése

Egy $m=2,5$ szupertükörön vizsgáltam a szennyezés reflektivitásra gyakorolt hatását. A tükör 135 Ni-Ti rétegpárból állt, mérete 50x10x0,5 cm volt. Noha a használat során a szennyeződés valószínűleg leginkább a levegőből származik, de feltehetően a legnagyobb hatással a szennyezők hidrogéntartalmának van a hidrogén nagy, $\sigma_{sc}=80$ barn szórási hatáskeresztmetszete miatt. A kísérletekhez Edwards Ultragrade 19 vákuumolajat használtam. Ez telített szénhidrogénekből áll, átlagos molekulásúlya 430, ami a $C_{30}H_{62}$ molekulának felel meg.

Az olajat melegítéssel párologtatva, és az edény szája előtt a mintát különféle sebességekkel elhúзва, többféle vastagságú (0,17 és 2,3 μm között) olajréteget vittem fel a minta felületére. Az adott mozgatási sebesség mellett felvitt olajréteg vastagságát és minőségét többféle módon vizsgáltam.

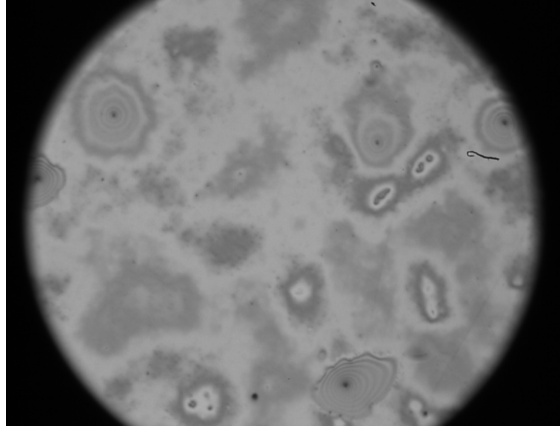
Kisebb, kb. 20 cm²-es és 20 g-os szupertükör darabkák súlyát megmértem az olajréteg felvitele előtt és után egy 0,0001 g érzékenységgű mérlegen, így az olajréteg vastagságát $\pm 0,025$ μm pontossággal megmértem. Ez a módszer csak átlagos vastagságot ad, és arról sem kapunk információt, hogy a felületen film képződik, vagy cseppek.

Az olajréteg vastagságát optikai interferenciaméréssel is meghatároztam (köszönet Ferencz Kárpátnak (Wigner FK Alkalmazott és Nemlineáris Optikai Osztály) a kísérleti közreműködésért). A 36. ábrán a mintára merőlegesen beeső fény reflektivitása látható, a 420 és 720 nm közötti hullámhossz-tartományban, tiszta felületre, illetve a szennyezett minta különböző pontjaira. A tükör fémfelületéről, és az olaj felszínéről visszaverődő fény interferenciája alapján meg lehet határozni a réteg vastagságát. Az interferencia megjelenése igazolja, hogy az olaj valóban réteg és nem cseppek formájában csapódott le, legalábbis a minta felületének jelentős részén. Az egyes minták különböző pontjain mért vastagságnak kb. 10 % szórása volt. Kb. 15%-os pontossággal ugyanazt az eredményt kaptuk, mint tömegméréssel.



36. ábra: A tiszta- és a súlymérés szerint 0,17 μm vastag olajréteggel borított minta különböző pontjaira mért optikai reflektivitások a beeső fény hullámhosszának függvényében.

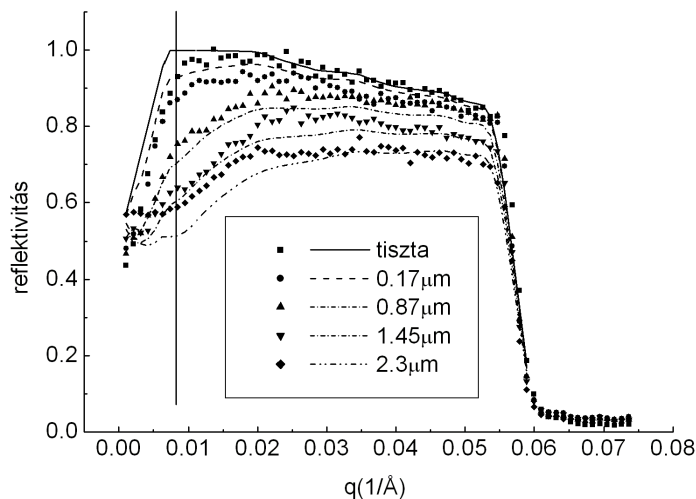
A párologtatott olajfilmeket mikroszkóppal is megfigyeltem. Több helyen Newton-féle interferenciagyűrűk látszottak, tehát a réteg nem volt egyenletes, hanem - főleg a vastagabb rétegek esetén - cseppek alakultak ki benne.



37. ábra: A neutron szupertükörre párologtatott olajréteg egyenetlenségei miatt interferencia okozta intenzitásváltozások figyelhetők meg a fénymikroszkópos felvételen. Több olajcseppnél Newton-gyűrűk láthatók.

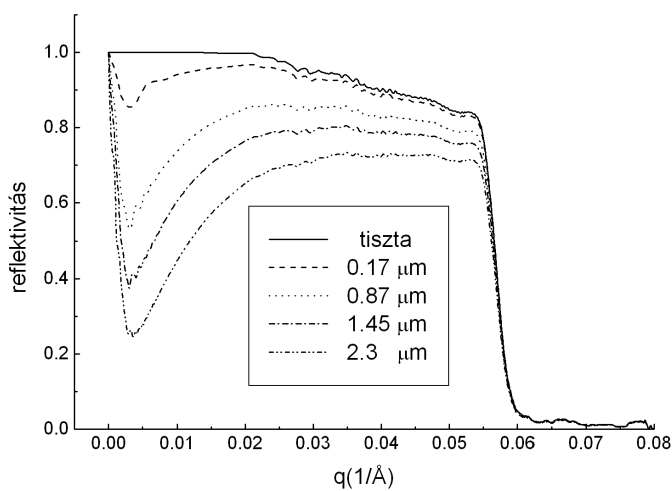
10.3.2 Neutronreflektometriai mérések és értelmezésük

A méréseket a REF neutron reflektométeren (6. fejezet) végeztem. A 38. ábrán pontok mutatják a mért reflektivitást a különböző vastagságú olajrétegek esetében, a $q=4\pi \cdot \sin\theta/\lambda$ hullámszám-változás függvényében.



38. ábra: a különféle vastagságú olajrétegekkel borított szupertükör reflektivitása a q hullámszám-változás függvényében. A pontok a mért, a vonalak a számított értékeket ábrázolják.

A várakozásnak megfelelően vastagabb olajréteg nagyobb veszteséget okoz, a hosszabb úton több neutron szóródik ki. A 2.4. fejezetben leírt Parratt-módszer alkalmazható a szupertükör és a fedő olajréteg együttes reflektivitásának számítására. Kiértékelésre a Parratt 3.2. szoftvert használtam⁶⁶. A szóráshossz-adatokból és a sűrűségből a vizsgált olaj szóráshosszsűrűsége $-4,0 \cdot 10^{-7} + i \cdot 7,83 \cdot 10^{-9} \text{ \AA}^{-2}$ -nek adódott. A mért rétegvastagságokat használva a 39. ábrán látható eredményt kaptam.

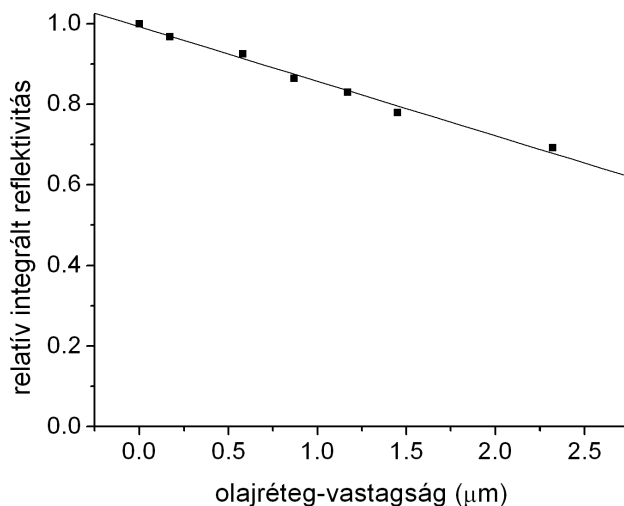


39. ábra: A Parratt-formulával kapott reflektivitások a különféle olajvastagságok mellett

A kisebb beesési szög, tehát hosszabb út miatt a q csökkenésével növekszik a veszteség. A $q = 0$ melletti teljes visszaverődés, majd gyors reflektivitáscsökkenés az olajon bekövetkező visszaverődéssel magyarázható (lásd (8) egyenlet).

A mért görbék ettől eltérnek, aminek többféle oka lehet. A mérés elején a minta mellett még elmegy a nyaláb egy része, míg nem fordul be, és fedí el az egész nyalábot. A 38. ábrán a függőleges vonal előtt torzít nagymértékben ez a hatás. A véges felbontás is befolyásolja a mérést. A két legvastagabb (1,45 és 2,3 μm) olajrétegnél lehetett leginkább cseppeket megfigyelni mikroszkóppal. Ennek figyelembevételére a következő egyszerűsített modellt alkalmaztam. A minta nagyobb részét vékonyabb, kisebb részét jóval vastagabb réteg borítja (cseppek). Mindkettőre kiszámoltam a Parratt-módszerrel a reflektivitást, és a felületaránynak megfelelő súllyal a kétféle felület járulékának lineáris kombinációját vettem. A 38. ábrán vonallal jelölt számított értékeket így kaptam. A tiszta

tükörrel ellentétben (10.2.2) a szennyezett tükrök reflektivitása nem írható le a Ni kritikus szögénél kezdődő lineáris csökkenéssel, ezért a reflektivitásgörbe alatti területet vettem a tükröreflektivitás mérőszámának. A kísérletekből meghatározva ez jó közelítéssel az olajvastagság lineáris függvénye (40. ábrán a tiszta tükröt egységnek véve), ez a mért lineáris függvény egy lecsengő exponenciális kezdő szakasza lehet.



40. ábra: az integrált reflektivitás csökkenése az olajréteg vastagságának függvényében

10.3.3 A szennyezés neutronvezetőre kifejtett hatásának becslése

A neutronvezetők többnyire a vízszintes síkban enyhén görbültek, keresztmetszetük téglalap. Legyen a vezető hossza L , görbületi sugara R , szélessége w , magassága pedig h ! A vezető két oldalsó fala közötti visszaverődéseknél a belső oldalon legalább 0 , a külső pedig ekkor $\theta_{\text{guide}} = \sqrt{2w/R}$ szöggel verődik vissza a neutron. Mivel a szupertükrö θ_{SM} határszöge egyenesen arányos a hullámhosszal, ezért egy bizonyos λ_{cr} kritikus hullámhossz alatt (melyet a $\lambda \theta_{\text{cr}1A} = \theta_{\text{cr}} = \sqrt{2w/R}$ egyenlet határoz meg) a neutronvezetés csak gyengén működik, a vezető pusztán a külső fal mentén visszaverődő kevéske neutron továbbítaná.

Hasznos, ha látjuk, körülbelül hányszor verődik vissza a falakon a neutron. Mivel csak kis szögekben történnek a visszaverődések, a vízszintes és függőleges irányt külön

kezelhetjük, a visszaverődések száma egyszerűen a két vetületre vett visszaverődések összege lesz.

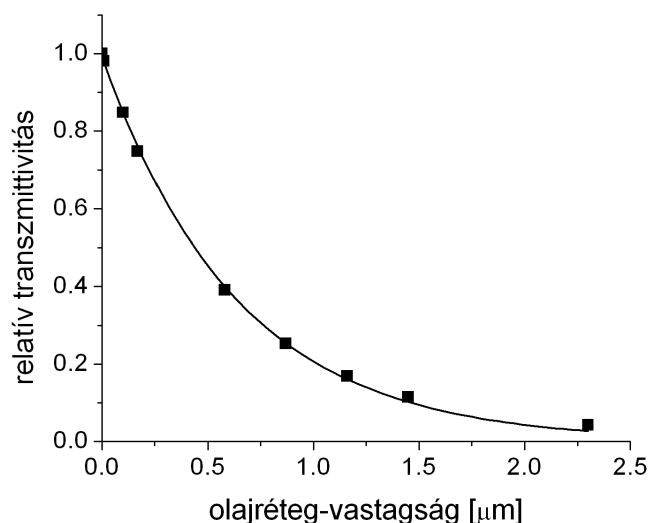
Mind görbe, mind egyenes vezetőre létezik analitikus képlet⁶⁷, amely megadja visszaverődések átlagos számát. A továbbiakban egy tipikus, 30 m hosszú, 4500 m görbületi sugarú, 2,5 cm széles, 10 cm magas neutronvezető példáját tekintjük, melynek belső felületét $m=2,5$ szupertükör alkotja.

Erre a kritikus hullámhossz $\lambda_c=0,77 \text{ \AA}$, e felett a visszaverődések átlagos száma a hullámhossz függvényében Mildner és Hammouda analitikus képletét⁶⁷ használva: $N(1 \text{ \AA})=2,85$; $N(2 \text{ \AA})=6,3$; $N(4 \text{ \AA})=12,9$; $N(8 \text{ \AA})=25,9$. Ennek felhasználásával megbecsülhető a vezető áteresztőképessége:

$$T=\langle R^N \rangle \approx \langle R \rangle^{\langle N \rangle} = (1-\alpha t)^{\langle N \rangle} = \exp(-\alpha N t), \quad (50)$$

ahol α a 40. ábra adataihoz illesztett egyenes meredeksége. Itt mind N , mind R szögfüggését elhanyagoltuk, és egységnek a tiszta vezetőt vettük. Látható, hogy az olajréteg vastagságával, illetve a visszaverődések számával a leromlás drasztikusan nő.

Kevésbé általános, de közelítések nélküli a Monte-Carlo szimuláció (kellően sok esemény szimulálásával). A 41. ábrán a VITESS programmal⁵³ kapott relatív (tiszta felületű vezetőre vonatkoztatott) transzmisszivitást látjuk a vastagság függvényében $\lambda = 4 \text{ \AA}$ -re. Az áteresztőképesség a neutronvezető végén kilépő és az elején bemenő neutronok számának hányadosa, azon egyértelműsítő feltételek mellett, hogy a bemeneti nyílás egyenletesen van megvilágítva, és a nyaláb divergenciája egyenlő a neutronvezető falát alkotó tükrök határszögével. Itt a tükör reflektivitását meg kellett adni a q függvényében. Alacsony q -kra ez nem mérhető, ezért a számolt értéket használtam. Az exponenciális jelleg jól látszik a 41. ábrán, és az erre való illesztésből (az ábrán vonal jelöli) (50) alapján kapott $\alpha=0,12 \text{ \mu m}^{-1}$ jó közelítéssel azonos a közvetlenül a 40. ábrára illesztett egyenes meredekségével.



41. ábra: A neutronvezető (hossz 30 m, keresztmetszet $2,5 \times 10 \text{ cm}^2$, görbületi sugár 4500 m, tükrös $m=2,5$) relatív transzmisszivitása az olajréteg vastagságának függvényében.

A Monte-Carlo szimuláció a nyaláb torzulását is mutatja, amelyet a vezető végére helyezett lyukkal, és távolabb helyzetérzékeny detektorral ki lehetne mutatni a szimuláció szerint. Ez a módszer használható működő neutronvezetők megfigyelésére⁶⁸.

Így megállapítottam, hogy a szennyezés jelentős transzmisszivitáscsökkenéshöz vezet, ezért fontos, hogy a neutronvezető rendszerek gondos tömítésével a levegőből lerakódó szennyeződés mértékét csökkentsük, a vákuumszivattyúknál pedig folyamatosan olajcsapdát kell használni.

A fenti modell fő hibája az a feltételezés, hogy a vezető belsejét egyenletesen borítja a szennyezés. Ez kérdéses, hiszen lehetséges, hogy a szennyeződés a forrása közelében rakódik le, és a párologtatásos kísérlet szerint vastagabb rétegeknél cseppek alakulnak ki. Modellszámítással bebizonyítottam, hogy a neutronvezetők transzmisszivitása jelentősen csökkenhet felületi szerves szennyezés hatására, a szennyeződés vastagságának exponenciális jellegű függvénye szerint. A neutronnyaláb-hajlító (,,bender”) esetén a keskeny csatornák miatt jóval kisebb távolságon belül felléphet ez a probléma.

11 Összefoglalás, kitekintés

Az értekezésben ismertetett munkámban kísérletet tettem a neutronoptikai célra használt, magnetronporlasztással készült Ni(Mo)-Ti vékonyrétegek tulajdonságairól szerzett ismereteink elmélyítésére.

Méréseim céljára felújítottam a REF neutron reflektométert, Monte-Carlo szimulációim alapján megterveztem és kísérletileg beállítottam az új fókuszáló monokromátor rendszert, továbbá új mérőprogramot írtam.

Spekuláris röntgen- és neutronreflektometriai mérésekkel meghatároztam a határfelületek elmosódottságát a szupertükrökkel azonos technikával készült periodikus Ni(Mo)-Ti rétegrendszerekre. Megállapítottam, hogy a Ni réteg és a rá párologatott Ti határfelületének elmosódottsága 9 \AA , a fordított esetben pedig 6 \AA . Mivel itt spekuláris reflexiót vizsgáltam, nem állapítható meg, hogy a határfelület így meghatározott elmosódottsága a két anyag esetleges homogén egymásba diffundálását, vagy ténylegesen érdességet jelent.

Offspekuláris röntgenszórási méréseket végeztem periodikus rétegrendszereken. Az offspekuláris szórás fellépte igazolta a felületi érdesség létét és a megfigyelt éles Rezonáns Diffúz Szórás (RDS) csúcsok pedig az érdesség hosszú távú, számos rétegre kiterjedő másolódását bizonyítja. A határfelületek közötti (azaz mintasíkra merőleges) korrelációs hossz nagyságát a spekuláris és offspekuláris csúcsok kísérletileg mért szélességéből kinematikus elméletet alkalmazva becsültem.

Neutron szupertükrökre offspekuláris neutronszerzési méréseket végeztem. A mérési eredményeket Torzított Hullámú Born Közelítéssel (DWBA) végzett számolásokkal egybevetve meghatároztam a határfelületi érdesség síkon belüli, valamint határfelületek közötti (másolódási) korrelációs hosszát. A másolódási korrelációs hossz periodikus rétegszerkezetek röntgenmérésén alapuló becslése összhangban van az így kapott értékkel.

A normál és fordított rétegrendű szerkezetek mért szórási képeinek különbségeit megmagyaráztam, és értelmeztem a $\theta_{in}-\theta_{out}$ szórási térkép jellegzetességeit. Megállapítottam, hogy a térkép különböző részletei az RDS mely rendjének és módjának (vagy a bejövő, vagy a visszavert neutronok szóródnak a laterális inhomogenitásokon) felelnek meg. A számolt szórási térképen szimmetrikus érdesség esetén a második rend

megfigyelt kioltása alapján rámutattam arra, hogy az érdesség asszimetriájának tanulmányozására az offspekuláris szórás lehetőséget nyújthat.

Méréseimben a reflektometriai mérésekben szokásos kollimációt alkalmaztam. A kapott eredmények értelmezése során rámutattam, hogy mind a periodikus, mind a szupertükrő mintákon pontkollimáció alkalmazásával, azaz GISAS mérésekkel a minta síkjával párhuzamos irányú síkbeli korrelációt pontosabban lehetne tanulmányozni. Meg lehetne mutatni, hogy a határfelületek közötti korrelációs hossz, azaz az érdesség másolódása hogyan függ annak térbeli hullámhosszától. Ebben az irányban jelenleg további vizsgálatokat végzek.

Fontos kérdés az, hogy a neutrontükrök reflektivitását hogyan befolyásolják az ideális, illetve kívánt szerkezettől való eltérések. Két eltérő algoritmussal különböző határszögű szupertükrő szerkezeteket számoltam. Ezekbe különböző hibákat (határfelületi érdességet, véletlenszerű rétegvastagság-ingadozást) beépítve numerikus szimulációval vizsgáltam az egyes szerkezetek hibatűrését, robosztusságát. Megállapítottam, hogy az alternatív, periodikus rétegcsomagokat alkalmazó Carron-Ignatovich tükrök reflektivitása és hibatűrése hasonló mértékű, mint a konvencionális, lassan változó rétegvastagságú Hayter-Mook algoritmussal tervezetteké. Tanulmányoztam továbbá a neutron szupertükrök felületi szennyeződésének hatását a reflektivitásra. A szennyező olajréteg függvényében mind kísérletileg, mind szimulációval meghatároztam a neutronvezető áteresztőképességét.

12 Summary

The high reflectivity of supermirror (SM) coatings of neutron guide walls is an eminent factor in slow neutron experiments. A SM is an aperiodic d -graded multilayer, in which the layer thicknesses are designed to ensure high reflectivity over a broad angular range. The present work aims to deepen our knowledge on magnetron-sputtered Ni(Mo)-Ti multilayers for neutron optics.

I studied the interface roughness of periodic Ni(Mo)-Ti multilayers by specular and off-specular neutron and x-ray reflectometry.

By specular neutron reflectometry I found the Ni-on-Ti and the Ti-on-Ni interfaces of different width. Whether the origin of the interface width is roughness or a diffusion profile, from specular reflectometry is impossible to determine.

I observed sharp X-ray Resonant Diffuse Scattering (RDS) peaks in off-specular scans performed on the same periodic Ni(Mo)-Ti multilayers. The appearance of RDS evidences the replication of interfacial roughness patterns. I estimated the out-of-plane correlation length of the roughness using kinematical arguments.

I measured off-specular neutron scattering on Ni(Mo)-Ti SMs. The parameters of roughness correlation (*viz.* in-plane and out-of-plane correlation lengths, Hurst parameter) were determined by calculations using the Distorted Wave Born Approximation. The differences in scattering patterns from normal and reverse-layer-sequence SMs and the features of the θ_{in} - θ_{out} scattering maps were systematized and explained in terms of the modes and orders of RDS. Pointing out the shortcomings of off-specular reflectometry in determining the in-plane correlation length I devised future experiments using Grazing Incidence Small Angle Scattering instead.

In preparation for the mentioned experiments the neutron reflectometer "REF" of the Budapest Neutron Centre had to be upgraded. I designed and (by Monte-Carlo simulations) optimized a focusing double monochromator for the reflectometer then installed and tested the device.

In exploring possible risks in the practical SM production and operation I determined

- the effects of different possible irregularities (*viz.* finite interface width, increased absorption, random variation of layer thickness) on the reflectivity of SMs by numerical calculations for the Hayter-Mook and the Carron-Ignatovich SM designs and confirmed equal applicability of them in practical SM production.
- the decrease of the SM reflectivity and that of the neutron guide transmissivity due to organic contamination of the SM surface by model calculations and specular reflectivity measurements.

13 Tézisek

I. Magnetronporlasztással üveghordozóra készült, különböző rétegszámú és rétegvastagságú periodikus $[\text{Ni}\{\text{Mo}\}(x \text{ \AA})/\text{Ti}(y \text{ \AA})]_n$ rétegrendszerek (n : 2-8; nominális x : 66-115; nominális y : 59-87) spekuláris neutron- és röntgenreflektivitására Parratt módszerrel illesztést végezve meghatároztam a rétegvastagságokat, a határfelületek elmosódottságát, továbbá a neutron- és röntgen szóráshosszsűrűségeket. Megállapítottam, hogy a Ni és a Ti rétegek elmosódottsága aszimmetrikus (Ni felszínén 9 Å, Ti felszínén 6 Å).^{69,70}

II. Offspekuláris röntgenszórási kísérletekkel, éles Rezonáns Diffúz Szórási csúcsok megfigyelésével igazoltam, hogy a periodikus Ni(Mo)-Ti rétegrendszerekben a határfelületi érdekesség nagy rétegszámra kiterjedően másolódik. Az offspekuláris és spekuláris csúcsok szélességét összevetve kinematikus közelítésben a vizsgált minták másolódási korrelációs hosszára mintától függően 1000-3200 Å alsó becslést adtam.

III. Offspekuláris neutronszórási méréseim alapján a Torzított Hullámú Born Közelítés (DWBA) alkalmazásával meghatároztam magnetronporlasztással készített neutron szupertükrök határfelületi érdekességének korrelációs paramétereit. Minden rétegre 7 Å érdekességet, 450 Å síkbeli korrelációs hosszat és 4000 Å másolódási korrelációs hosszat feltételezve a megfigyelésekkel egyező szórási képet kaptam mind az $m=3$ (550 réteg), mind az $m=2,5$ (320 réteg) neutron szupertükörré, amelyekben a rétegpárvastagság a hordozótól kezdve monoton nőtt, illetve csökkent.⁷¹

IV. Méréseim és DWBA módszerrel számolt $\theta_{\text{in}}-\theta_{\text{out}}$ szórási intenzitástérképek alapján megállapítottam, hogy a szórási képben megfigyelhető platók (normál rétegsorrend esetén 1, fordított rétegsorrend esetén 2 plató) le és felfutási élének helye a beesési szög és a SM határszögének lineáris függvénye. Meghatároztam ezen egyenesek egyenleteit a kétféle rétegsorrendre.⁷¹

V. Figyelembe véve a szupertükrök egyes rétegeit fedő rétegrendszer szakaszok szögtől függő transzmisszivitását, meghatároztam, hogy az RDS különböző rendjei és módjai

(RDS-i és RDS-r) a szórás intenzitástérkép mely tartományaiban eredményezhetnek szórást, valamint, hogy a térkép egyes pontjaiban a szórás mely rétegekből eredhet. A szórás térképen kinematikus közelítésben meghatározott tartományok egyeznek a DWBA módszerrel kapott térkép tartományaival, egyszersmind visszaadva a diffúz platók kísérletileg meghatározott határait. Az értelmezés magyarázza a mért szórás legszembeszökőbb vonását, miszerint a normál rétegrendű szupertükörben az RDS-i első rendje tiltott.⁷¹

VI. Meghatároztam a szupertükrök egyes tökéletlenségeinek hatását a neutron reflektivitásra.

a) Numerikus szimulációval összehasonlítottam a hordozótól kezdve egyenletesen növekvő rétegpárvastagságú, Hayter-Mook algoritmussal tervezett, és a periodikus rétegsomagokból álló, Carron-Ignatovich-féle neutron szupertükrök hibatűrését. Az ideálistól háromféle tekintetben eltérő (elmosódott határfelületű, véletlenszerűen eltérő rétegvastagságokkal rendelkező, illetve megnövekedett abszorpciójú) rétegszerkezetek reflektivitása a kétféle módszerrel tervezett szupertükrökre hasonló mértékben csökken. Reflektivitásméréssel kísérletileg is összehasonlítottam egy AP és PI algoritmussal tervezett $m=2$ határszögű tükröt, és igazoltam, hogy a két módszer azonos mértékben alkalmas szupertükrök tervezésére.⁴⁵

b) Nyolc, 0,17 és 2,3 μm közötti vastagságú olajréteggel borított szupertükör neutronreflektivitásban a vastagság növekedtével kísérletileg tapasztalt egyre jelentősebb reflektivitáscsökkenést értelmeztem. Egy tipikus neutronvezető működését Monte-Carlo szimulációval modellezve megállapítottam, hogy a hatás jelentős, a neutronvezető relatív transzmisszivitása az olajréteg vastagságával exponenciálisan csökken.⁷²

c) Ellenpéldákat találva rámutattam, hogy téves az az egyszerű elképzelés, miszerint a kisebb határreflektivitású tükrök érdessége és következésképp offspekuláris szórása nagyobb lenne. A spekuláris reflektivitás ugyanis csak a határfelület élettenségtől függ, az offspekuláris reflektivitás viszont attól, hogy ebből mekkora az érdesség járuléka, továbbá, hogy ez az érdesség milyen mértékben korrelált az egymás utáni határfelületeken.⁷¹

14 Köszönetnyilvánítás

Ezúton szeretném megköszönni első témavezetőmnek, Cser Lászlónak a támogatást és irányítást, valamint számos probléma felvetését. Második témavezetőmnek, Bottyán Lászlónak köszönöm az offspekuláris szórással kapcsolatos közös munkát, és a dolgozat végső formába öntésében nyújtott segítségét. Hálás vagyok Rosta Lászlónak és Füzi Jánosnak a munka lehetőségének biztosításáért, Deák Lászlónak és Wacha Andrásnak a dolgozat intézeti védeke előtti gondos átnézéséért. Megköszönöm Sajti Szilárdnak a FitSuite program céljaimhoz szükséges módosítását, Bálint Szabolcsnak, Horváth Zsolt Endrének a röntgenes méréseket, a Mirrotron Kft.-nek és Miskolczi Tibornak a mintakészítést, továbbá valamennyi szerző- és munkatársamnak az együttműködést. Köszönöm szüleim és testvérem támogatását.

15 Irodalom

¹ P. B. Barna, M. Adamik TSF 317 (1998) 27-33

² A. Erko et al. (Eds.) Modern developments in x-ray and neutron optics, Ch. 22. Neutron SM development, Th. Krist, A. Teichert, R. Kovács-Mezei és L. Rosta

³ Czigány Zsolt: Amorf és polikristályos multirétegek szerkezete és morfológiai tulajdonságai, PhD értekezés, MTA Műszaki Fizikai és Anyagtudományi Kutatóintézet, 1999

⁴ Czigány Zsolt, Radnóczy György TSF 347 (1999) 133-145

⁵ Karunasiri, R. P. U., Bruinsma, R., Rudnick, J. (1989) *Phys. Rev. Letters* **62** (1989) 788-791.

⁶ Drotar, J. T., Zhao, Y.-P., Lu, T.-M., Wang, G.-C. (2000) *Phys. Rev. B.* **62**, 2118-2125.

⁷ A. Paul, A. Teichert, Th. Krist, R. Steitz J. of Appl. Cryst. 48 (2015) 1023-1033

⁸ Kiss Dezső és Quittner Pál, Neutronfizika, Budapest, 1971

⁹ Cser László, Kondenzált közegek vizsgálata neutronszerkezettel, Budapest, 2010

¹⁰ V. F. Turchin, Slow neutrons, Jerusalem, 1965, 2. Basic theory of interaction of slow neutrons with matter

¹¹ V. F. Sears, Neutron optics, New York-Oxford, Oxford University Press, 1989, 3.4. Neutron refractometry

¹² L. Koester, H. Rauch, E. Seyman Atomic Data and Nucl. Data Tab. 49 (1991) 65

¹³ V. F. Sears, Neutron optics, New York-Oxford, Oxford University Press, 1989, 4. Rigorous theory of dispersion

¹⁴ V. F. Sears, Neutron optics, New York-Oxford, Oxford University Press, 1989, 4.3. Microscopic theory of dispersion, eq. 4.3.43.

-
- ¹⁵ L. G. Parratt, *Phys. Rev.* **95** (1954) 359-369
- ¹⁶ Rühm, A., Toperverg, B. P. & Dosch (1999) *Phys. Rev. B.* **60**, 16073-16077.
- ¹⁷ Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany Chapter 3. 3.A.3. appendix, p. 116-117 (2009)
- ¹⁸ Nevot, L. & Croce, P. (1980) *Rev. Phys. Appl.* **15**, 761-779.
- ¹⁹ de Boer Phys B] D. K. G. de Boer, A. J. G. Leenaers (1996) *Physica B* **221** 18-26
- de Boer, D. K. G. (1994) *Phys. Rev. B.* **49**, 5817-5820.
- ²⁰ J. Füzi (2008) *Nuclear Instruments and Methods A* **586** 41-45.
- ²¹ P. A. Tompkins (1994) *Journal of X-ray Science and Technology* **4**, 301-311
- ²² Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany, Chapter 4.1.3.1. p. 136-138 (1999)
- ²³ Deák, L. & Fülöp, T. (2012) *Annals of Physics* **327**, 1050-1077.
- ²⁴ S. K. Sinha, E. B. Sirota, S. Garoff and H. B. Stanley X-ray and neutron scattering from rough surfaces *Physical Review B* **38** (1988) 2297-2311
- ²⁵ Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany Chapter 4.3. p. 145-152 (1999)
- ²⁶ Holy, V., Kubena, J., Ohlídal, I., Lischka, K., & Plotz, W. (1993) *Phys. Rev. B* **47**, 15896-15903.
- ²⁷ Holy, V. & Baumbach, T. (1994) *Phys. Rev. B.* **49**, 10668-10676.
- ²⁸ Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany Chapter 2.2.4. p. 65-66 (1999)
- ²⁹ Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany p. 239-240 and 258 (1999)
- ³⁰ Ming, Z. H., Krol, A., Soo, Y. L., Kao, Y. H., Park, J. S. & Wang, K. L. (1993) *Phys. Rev. B.* **47**, 16373-16381.
- ³¹ Siffalovic, Peter; Jergel, Matej; Chitu, Livia; et al. (2010) *Journal of Applied Crystallography* **43** 1431-1439
- ³² M. Jergel et al. *Thin Solid Films* **520** (2011) 667–673
- ³³ Amitesh Paul et al. *J. Appl. Cryst.* (2014) **47**, 1065–1076
- ³⁴ P. Siffalovich et al. *Vacuum* **84** (2008) 19-25
- ³⁵ Kaganer, V. M., Stepanov, S. A. & Köhler, R. (1995) *Phys. Rev. B* **52**, 16369-16372.
- ³⁶ Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany p. 258 (1999)
- ³⁷ Y. Yoneda, *Phys.Rev.***131** 2010-2013 (1963)
- ³⁸ S. V. Kozhevnikov, F. Ott, E. Kentzinger and A. Paul (2007) *Physica B* **397** 68-70
- ³⁹ S. V. Kozhevnikov, F. Ott, A. Paul and L. Rosta (2009) *Eur. Phys. J. Special Topics* **167** 87-92
- ⁴⁰ Daillant, A.Gibaud: *X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, printed in Germany Chapter 4.4.1. p. 153-154 (1999)
- ⁴¹ Petr Mikulik: *X-ray reflectivity from planar and structured multilayers*, PhD Thesis, Universite Joseph Fourier, Grenoble and Universite Masaryk, Brno, 1999, www.sci.muni.cz/~mikulik/Thesis/
- ⁴² F. Mezei, *Communications on Physics* **1** (1976) 81

-
- ⁴³ J.B. Hayter, H.A. Mook, *Journal of Applied Crystallography* **22** (1989) 35
- ⁴⁴ J. Carron, V. Ignatovich, *Physical Review A* **67** (2003) 043610
- ⁴⁵ Veres, T. & Cser, L. (2015). *Pollack Period.* **10**, 71–80.
- ⁴⁶ S. Masalovich, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **722** (2013) 71
- ⁴⁷ R. Maruyama, D. Yamazaki, T. Ebisawa, M. Hino and K. Soyama *Thin Solid Films* **515** (2007) 5704-5706
- ⁴⁸ F. Mezei, P. A. Dagleish, *Communications on Physics* **2** (1977) 41
- ⁴⁹ M. Senthil Kumar, P. Böni, S. Tixier *Physica B* **248** (1998) 53-55
- ⁵⁰ Elsenhans, Böni et al. *Thin Solid Films* **246** (1994) 110-119
- ⁵¹ L. Bottyán, D.G. Merkel, B. Nagy, J. Füzi, Sz. Sajti, L. Deák, G. Endrőczy, A.V. Petrenko, *J. Major Rev. Sci. Instrum.* **84** (2013) 015112.
- ⁵² M. Schuster, H. Göbel *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28** (1995) A270-A275
- ⁵³ G. Zsigmond, K. Lieutenant, S. Manoshin, H. N. Bordallo, J. D. M. Champion, J. Peters, J. M. Carpenter, and F. Mezei, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **529**, 218 (2004).
- ⁵⁴ J. W. Cable et al., *Phys. Rev. B*, **34**, (1986)1643-1649
- ⁵⁵ R. Kovács-Mezei, Th. Krist, Zs. Révay, *Nucl. Inst. Methods A* **586** (2008) 51.
- ⁵⁶ S. Singh, S. Basu, P. Bhatt, A.K. Poswal, *Phys. Rev. B* **79** (2009) 195435.
- ⁵⁷ M.S. Kumar, P. Böni, M. Horisberger, *NIMA* **529** (2004) 90.
- ⁵⁸ Maruyama, R., Yamazaki, D., Ebisawa, T. & Soyama, K. (2009) *J. Appl. Phys.* **105**, 083527 1-8.
- ⁵⁹ Sajti, Sz. (2009) FitSuite (<http://arxiv.org/abs/0907.2805v1>) is freely downloadable from its homepage <http://www.fs.kfki.hu>
- ⁶⁰ Salditt, T., Lott, D., Metzger, T. H., Peisl, J., Vignaud, G., Hoghoy, P., Schärpf, O., Hinze, P. & Lauer, R. (1996). *Phys. Rev. B*, **54**, 5860–5872.
- ⁶¹ I. Petrov, P. B. Barna, L. Hultman, J. E. Greene (2003) *J. Vac. Sci. Technol. A* **21**, 117-126
- ⁶² Spiller, E., Stearns, D. & Krumrey, M. (1993). *J. Appl. Phys.* **74**, 107–118.
- ⁶³ R Boffy, Design of a new neutron delivery system for high flux source, PhD thesis, Universidad Politecnica de Madrid, 2016
- ⁶⁴ R. Boffy, M. Kreuz, J. Beaucour, U. Köster, and F.J. Bermejo, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **358** 179 – 187 (2015)
- ⁶⁵ V. A. Ul'yanov et al. *Physica B* **297**, 136 (2001)
- ⁶⁶ Christian Braun, HMI, Berlin, 1997., a HMI honlapon jelenleg nem elérhető, Parratt szoftver
- ⁶⁷ Mildner és Hammouda, *J. Appl. Cryst.* (1992) **25**,39-45.
- ⁶⁸ J. Füzi, *Physica B* (2006) **385–386**, 1253
- ⁶⁹ V. Bodnarchuk, L. Cser, V. Ignatovich, T. Veres and S. Yaradaykin *JINR COMMUNICATION E14* 2009-127. (2009)
- ⁷⁰ T. Veres, L. Cser, V. Bodnarchuk, V. Ignatovich, Y. E. Horváth, B. Nagy *Thin Solid Films* **540** 69 (2013)
- ⁷¹ T. Veres, L. Cser, Sz. Bálint, Sz. Sajti and L. Bottyán *Journal of Applied Crystallography* **50** 184-191 (2017)
- ⁷² T. Veres and L. Cser *Review of Scientific Instruments* **81**, 063303 (2010)

ADATLAP
a doktori értekezés nyilvánosságra hozatalához*

I. A doktori értekezés adatai

A szerző neve: Veres Tamás

MTMT-azonosító: 10018121

A doktori értekezés címe és alcíme: Neutronoptikai célú fém vékonyrétegek vizsgálata

DOI-azonosító: 10.15476/ELTE.2018.028

A doktori iskola neve: ...ELTE Fizika Doktori Iskola.....

A doktori iskolán belüli doktori program neve: Anyagtudomány és szilárdtestfizika.....

A témavezető neve és tudományos fokozata: ...Bottján László, kandidátus.....

A témavezető munkahelye: ...MTA Wigner FK, RMI,.....

II. Nyilatkozatok

1. A doktori értekezés szerzőjeként hozzájárulok, hogy a doktori fokozat megszerzését követően a doktori értekezésem és a tézisek nyilvánosságra kerüljenek az ELTE Digitális Intézményi Tudástárban. Felhatalmazom a Természettudományi kar Dékáni Hivatal Doktori, Habilitációs és Nemzetközi Ügyek Csoportjának ügyintézőjét, hogy az értekezést és a téziseket feltöltse az ELTE Digitális Intézményi Tudástárba, és ennek során kitöltse a feltöltéshez szükséges nyilatkozatokat.

2. A doktori értekezés szerzőjeként kijelentem, hogy

a) az ELTE Digitális Intézményi Tudástárba feltöltendő doktori értekezés és a tézisek saját eredeti, önálló szellemi munkám és legjobb tudomásom szerint nem sértem vele senki szerzői jogait;

b) a doktori értekezés és a tézisek nyomtatott változatai és az elektronikus adathordozón benyújtott tartalmak (szöveg és ábrák) mindenben megegyeznek.

3. A doktori értekezés szerzőjeként hozzájárulok a doktori értekezés és a tézisek szövegének plágiumkereső adatbázisba helyezéséhez és plágiumellenőrző vizsgálatok lefuttatásához.

Kelt: 2018. március 12.

.....
a doktori értekezés szerzőjének aláírása

**ELTE SZMSZ SZMR 12. sz. melléklet*